

ZEITSCHRIFT FÜR PHYSIK

HERAUSGEGEBEN UNTER MITWIRKUNG
DES VERBANDES
DEUTSCHER PHYSIKALISCHER GESELLSCHAFTEN

VON

O. HAXEL UND J. HANS D. JENSEN

164. BAND

MIT 236 FIGUREN IM TEXT



SPRINGER-VERLAG
BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG
1961

Alle Rechte, einschließlich das der Übersetzung in fremde Sprachen und das der fotomechanischen Wiedergabe oder einer sonstigen Vervielfältigung, vorbehalten. Jedoch wird gewerblichen Unternehmen für den innerbetrieblichen Gebrauch nach Maßgabe des zwischen dem Börsenverein des Deutschen Buchhandels e.V. und dem Bundesverband der Deutschen Industrie abgeschlossenen Rahmenabkommens die Anfertigung einer fotomechanischen Vervielfältigung gestattet. Wenn für diese Zeitschrift kein Pauschalabkommen mit dem Verlag vereinbart worden ist, ist eine Wertmarke im Betrage von DM 0,30 pro Seite zu verwenden. *Der Verlag läßt diese Beträge den Autorenverbänden zufließen.*

Die Wiedergabe von Gebrauchsnamen, Handelsnamen, Warenbezeichnungen usw. in dieser Zeitschrift berechtigt auch ohne besondere Kennzeichnung nicht zu der Annahme, daß solche Namen im Sinne der Warenzeichen- und Markenschutz-Gesetzgebung als frei zu beachten wären und daher von jedermann benutzt werden dürften.

Springer-Verlag OHG / Berlin · Göttingen · Heidelberg

Printed in Germany

Druck der Universitätsdruckerei H. Stürtz AG., Würzburg

1
237
164

Inhalt des 164. Bandes

Erstes Heft

(Abgeschlossen am 20. Juli 1961)

	Seite
STICKFORTH, J., Zur Theorie der Bremsstrahlung in Plasmen hoher Temperatur. Mit 6 Figuren im Text	1
HORSTMANN, M., und G. MEYER, Wirkungsquerschnitt und Winkelverteilung der elastischen und unelastischen Elektronenstreuung in Aluminiumschichten. Mit 6 Figuren im Text	21
MÜLLER, K. G., Die kathodischen Entladungsgebiete der nichtstationären Glimmentladung. Mit 6 Figuren im Text	40
BOERSCH, H., H. HAMISCH, D. WOHLLEBEN und K. GROHMANN, Beugung von Elektronenwellen an magnetischen Strukturen	55
EILENBERGER, G., Ein Beitrag zur Theorie der inneren Feldemission. Mit 3 Figuren im Text	59
LEUTZ, H., Das β^+ -Spektrum des Na ²² . Mit 3 Figuren im Text	78
ECKART, F., und H. SCHULZ, Kontaktspannungsmessungen an CdS-Einkristallen. Mit 4 Figuren im Text	83
SIOL, M., Zur Theorie des schmelzflüssigen Zustands. Mit 2 Figuren im Text	93
SPRINGER, T., und W. WIEDEMANN, Untersuchung des Streuquerschnittes von Eis für sehr langsame Neutronen bei 4° K. Mit 2 Figuren im Text	111
KANZLER, G., Zur Frage der Elektronennach- und induzierten Photoemission von Germanium und Silizium. Mit 5 Figuren im Text	120
KANZLER, G., Zur Elektronennachemission von Chininsulfat und Dickit. Mit 3 Figuren im Text	126

Zweites Heft

(Abgeschlossen am 3. August 1961)

MARX, H., Mehrdimensionaler Hamiltonscher Formalismus	129
MÜLLER, H., Zur Frage des hydrodynamischen Verhaltens einfacher Makromolekülmodelle in einem inhomogenen Strömungsfeld	139
MEIXNER, J., Der Drehimpulssatz in der Thermodynamik der irreversiblen Prozesse . .	145
DEICHSEL, H., Herstellung und Nachweis polarisierter Elektronenstrahlen durch zweimalige Streuung von Glühelctronen kleiner Energie (1–2 keV) an Hg-Atomstrahlen. Mit 8 Figuren im Text	156
LANGHOFF, H., und H.-H. HENNIES, Zum experimentellen Nachweis von Zweiquantenzerfall beim 0 ⁺ -0 ⁺ -Übergang des Zr ⁹⁰ . Mit 4 Figuren im Text	166
KLEINPOPPEN, H., Vermessung der Lamb-Verschiebung des 3 ² S _{1/2} -Zustandes gegenüber dem 3 ² P _{1/2} -Zustand am Wasserstoffatom. Mit 8 Figuren im Text	174
UHLENBUSCH, J., und E. FISCHER, Hydromagnetische Strömung im kreiszylindrischen Rohr. Mit 5 Figuren im Text	190

	Seite
BIEM, W., Über die Temperaturabhängigkeit der Lichtabsorption durch Excitonen. Mit 3 Figuren im Text	199
BEHMENBURG, W., Thermoelektronen- und induzierte Photoelektronenemission bei Zinksulfid. Mit 6 Figuren im Text	222
MÖNCH, W., Messung der Fehlorderungsenergie an abschreckend kondensierten Metallschichten bei tiefer Temperatur. Mit 7 Figuren im Text	229

Drittes Heft

(Abgeschlossen am 21. August 1961)

GROHMANN, I., K.H. HELLWEGE und H.G. KAHLE, Spektrum, Zeeman-Effekt und Elektronenterme des dreiwertigen Holmiums in kristallinen Salzen. Mit 7 Figuren im Text	243
HÜFNER, S., Matrixelemente für die Elektronenkonfiguration f^4 . I. Die Koeffizienten der Abstammungsanteile und die Matrixelemente der Spin-Bahn-Kopplung . . .	257
HÜFNER, S., Matrixelemente für die Elektronenkonfiguration f^4 . II. Termschema des Ho^{3+} -Ions. Mit 1 Figur im Text	269
KELLER, M., Ein Biprisma-Interferometer für Elektronenwellen und seine Anwendung. Mit 10 Figuren im Text	274
KELLER, M., Elektronen-Zweistrahlinterferenzen mit hohem Gangunterschied. Mit 1 Figur im Text	292
PFEFFER, W., Spezifische Wärmen von $\text{DyCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ und $\text{NdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ im Temperaturbereich zwischen 1,2 °K und 220 °K. Mit 5 Figuren im Text	295
DANIEL, H., und PH. PANUSSI, Das β -Spektrum des In^{114} . Mit 4 Figuren im Text . . .	303
DRECHSEL, W., Über die Vergrößerung der meridionalen magnetooptischen Kerr-Drehung durch Aufdampfschichten. Mit 11 Figuren im Text	308
DRECHSEL, W., Eine Anordnung zur photographischen Registrierung von Weißschen Bereichen bei Belichtungszeiten der Größenordnung 1 msec. Mit 4 Figuren im Text	324
KRÜGER, L., und J. ROTHLEITNER, Zerfall negativer Myonen in der K-Schale. Mit 3 Figuren im Text	330
GROSS, H., Hat das M-Zentrum in KCL ein magnetisches Moment? Mit 11 Figuren im Text	341

Viertes Heft

(Abgeschlossen am 4. September 1961)

HORA, H., und H. MÜLLER, Phänomenologische Betrachtung zur Photon-Elektron-Wechselwirkung in einem Plasma. Mit 1 Figur im Text	359
BAUER, H. J., und E. SCHMIDBAUER, Über den Einfluß elektrolytischer Wasserstoffbeladung auf die Magnetisierung von Nickel. Mit 8 Figuren im Text	367
GREINER, W., Die Kernpolarisation in Mesonenatomen bei kugelsymmetrischen Mesonenzuständen. Mit 4 Figuren im Text	374
LEHMPPFUHL, G., und K. MOLIÈRE, Interferenzbrechung bei Durchstrahlung makroskopischer Kristallkeile. Mit 10 Figuren im Text	389
SCHMITZ, G., und H. NIESTERS, Die Zündung in Wasserstoff im Bereich des Nahdurchschlags. Mit 11 Figuren im Text	409
KILIAN, P., Die Vernichtung von Positronen im Fluge. Mit 5 Figuren im Text	416
LENZ, F., Eine Erweiterung des Cornu-Diagramms auf den Fall einer teildurchlässigen und phasenschiebenden Halbebene. Mit 2 Figuren im Text	425
DAMAŠKOVÁ, S., und K. PÁTEK, Der Einfluß eines elektrischen Feldes auf die Absorptionskante von ZnS. Mit 3 Figuren im Text	428

	Seite
SCHOLZ, A., und O. STASIW, Zur Absorption der belichteten Silberhalogenidkristalle mit Chalkogenionenzusätzen. Mit 4 Figuren im Text	431
KANKELEIT, E., Untersuchung von Konversionselektronen beim Mößbauer-Effekt am Wolfram-182 mit einem magnetischen Spektrometer. Mit 6 Figuren im Text.	442
HÜFNER, S., Matrixelemente für die Elektronenkonfiguration f^4 . III. Die Eigenzustände des Ho^{3+} -Ions	456
SALECKER, H., Formfaktor des π -Mesons und Struktur der Nukleonen. Mit 10 Figuren im Text.	463

Fünftes (Schluß-)Heft

(Abgeschlossen am 4. Oktober 1961)

DEHNEN, H., H. HÖNL und K. WESTPFAHL, Über die Unabhängigkeit der Sommerfeldschen Feinstrukturkonstanten vom Gravitationsfeld	483
LUDWIG, W., Die elastische Instabilität einer rein-harmonischen Kristalltheorie	490
HYLLERAAS, E. A., Zur praktischen Lösung der relativistischen Einelektronengleichung. II	493
RIEMANN, M., Über Ionisierungsgleichgewichte und Intensitäten von Spektrallinien in thermischen Mehrstoffplasmen. Mit 5 Figuren im Text	507
DRAWIN, H.-W., Zur formelmäßigen Darstellung der Ionisierungsquerschnitte gegenüber Elektronenstoß. Mit 6 Figuren im Text	513
MENZEL, E., und K. HOHLFELD, Lichtmikroskopie mit mechanischer Vorvergrößerung. Mit 6 Figuren im Text	522
ASCHE, M., und F. ECKART, Zum Einfluß von Wasserstoff auf die Photoleitfähigkeit von CdS-Einkristallen. Mit 5 Figuren im Text	529
FOREMAN, H., M. B. ROBERTS and E. H. LILLY, Radioactivity in Cervidae Antlers. With 1 Figure in the Text	537
BOCK, R., Bestimmung des Compoundkern- und Stripping-Anteils der (d, p) - und (d, n) -Reaktionen an Zr^{94} und Zr^{96} . Mit 4 Figuren im Text	546
LANDÉ, A., Warum interferieren die Wahrscheinlichkeiten?	558
BAUER, A., Zur Feldbogentheorie bei kalten, verdampfenden Kathoden. I. Mit 4 Figuren im Text	563
PACHNER, J., Das Gravitationsfeld eines Massenpunktes im expandierenden Kosmos	574
BUSCH, F. v., und W. PAUL, Isotopentrennung mit dem elektrischen Massenfilter	581
BUSCH, F. v., und W. PAUL, Über nichtlineare Resonanzen im elektrischen Massenfilter als Folge von Feldfehlern. Mit 3 Figuren im Text	588
Autorenverzeichnis	595



Digitized by the Internet Archive
in 2024

Aus den Forschungsanstalten der Fa. Fried. Krupp, Essen
und aus dem Institut für Theoretische Physik
der Technischen Hochschule München

Zur Theorie der Bremsstrahlung in Plasmen hoher Temperatur*

Von

JÜRGEN STICKFORTH

Mit 6 Figuren im Text

(Eingegangen am 10. Mai 1961)

Es wird der über alle Frequenzen integrierte Bremsstrahlungsemissionskoeffizient für ein Wasserstoffplasma, dessen Elektronentemperatur höher als etwa 10^8 °K ist, berechnet. Es wird sowohl die bei Elektronen-Ionen-Stößen als auch die bei Elektronen-Elektronen-Stößen entstehende Strahlung berücksichtigt, und zwar in der Bornschen Näherung. Für die Elektron-Ion-Strahlung bedeutet dies die Verwendung des Bethe-Heitlerschen Strahlungswirkungsquerschnittes; für die Elektron-Elektron-Strahlung wird der zu benutzende Wirkungsquerschnitt mit nur geringer Willkür interpolatorisch aus den von GARIBYAN im nichtrelativistischen und im extremrelativistischen Grenzfall abgeleiteten Ausdrücken gewonnen. Die Mittelung über die Elektronenenergien wird mit relativistischen Maxwell-Verteilungen numerisch ausgeführt. Der Fehler der Bornschen Näherung bei der gesamten Elektron-Elektron-Strahlung erweist sich mit Hilfe einer halbklassischen Überlegung in nichtrelativistischer Berechnung ab $T = 10^8$ °K als etwa 2,5 mal kleiner als bei der Elektron-Ion-Strahlung, für die er bei dieser Temperatur 4% beträgt, um dann wie $1/\sqrt{T}$ abzunehmen.

1. Einleitung

In einem Plasma tragen im allgemeinen verschiedene Mechanismen zur Erzeugung von elektromagnetischer Strahlung bei. Die Verhältnisse vereinfachen sich sehr, wenn die Temperatur so hoch wird, daß auch für die Strahlungsemission praktisch nur freie Elektronenzustände eine Rolle spielen, da dann per definitionem keine Rekombinationsstrahlung und ähnliche Strahlungsarten auftreten. In einem allgemeinen Sinne nennt man jede von Frei-Frei-Übergängen herrührende Strahlung eine „Bremsstrahlung“. Im besonderen hat man zwischen drei Bremsstrahlungsarten zu unterscheiden, je nachdem ob die zur Emission von Photonen führende Streuung der Elektronen im Felde positiver Ionen („ e - i -Strahlung“), im Felde anderer Elektronen („ e - e -Strahlung“) oder in dem das Plasma zusammenhaltenden äußeren Feld, welches im Laboratorium meist ein Magnetfeld ist („magnetische Strahlung“ oder

* Auszug aus einer bei der Technischen Hochschule München eingereichten Dissertation (1961).

„Zyklotronstrahlung“), erfolgt. Von diesen drei Strahlungsarten sollen in dieser Arbeit nur die beiden ersten diskutiert werden.

Die Frage nach den Bremsstrahlungsverlusten eines vollständig ionisierten Wasserstoffplasmas war vor allem durch die Bemühungen, kontrollierte thermonukleare Reaktionen zu erzeugen, in den letzten zehn Jahren aktuell geworden. Anfangs berücksichtigte man für Energiebilanzbetrachtungen oft nur die $e-i$ -Strahlung¹, zog gelegentlich aber auch die $e-e$ -Strahlung mit in Betracht^{2,3}, die zwar bei tieferen Temperaturen wegen ihres Quadrupolcharakters hinter der dipolartigen $e-i$ -Strahlung zurücktritt, dieser aber bei den höchsten Temperaturen, die für die kontrollierte Kernfusion in Frage kommen, nämlich bei etwa 100 keV*, gleich wird. Als man dann jedoch die ausschlaggebende Rolle der magnetischen Strahlung bei diesen höchsten Temperaturen erkannte^{4,5,6}, wurde die Berechnung der $e-i$ - und der $e-e$ -Strahlung oberhalb von größenordnungsmäßig 10 keV allerdings zu einem mehr theoretisch interessanten Problem. Trotzdem ist die Diskussion dieser Frage auch weiterhin in Gang geblieben, wie etwa die jüngst erschienenen Arbeiten von J. KVASNICA^{7,8} zeigen. Das Problem besteht in folgendem:

Oberhalb von etwa 10 keV Temperatur muß man erwarten, daß relativistische Einflüsse wesentlich werden können, denn die Elektronenruhenenergie mc^2 beträgt nur 511 keV. Da aber die relativistische Maxwell-Verteilung und die Bethe-Heitler-Formel für den $e-i$ -Strahlungswirkungsquerschnitt im allgemeinen Fall rechnerisch sehr viel unannehmer sind als in ihren nichtrelativistischen Grenzfällen, ist bereits die relativistische Berechnung der $e-i$ -Strahlung nicht mehr ganz trivial. In demselben Maße, wie relativistische Einflüsse bei der $e-i$ -Strahlung wesentlich werden, hat man auch die in erster Näherung quadrupolartige

* Unter „Temperatur“ werden wir meistens das Produkt aus Boltzmann-Konstante k und absoluter Temperatur T verstehen und dieses in Kiloelektronenvolt messen: $(kT)_{T=10^8 \text{ }^\circ\text{K}} = 8,62 \text{ keV}$.

¹ Post, R. F.: Rev. Mod. Phys. **28**, 338 (1956).

² THOMPSON, W. B.: A. E. R. E. T/M 73 [1954], Harwell 1957. (In eckige Klammern gesetzte Jahreszahlen bedeuten das Jahr der Anfertigung einer erst später veröffentlichten Arbeit.)

³ ZUBAREV, D. N., u. W. N. KLIMOV [1952], insbesondere §2, in: M. A. LEONTOVICH, Plasmaphysik und das Problem der kontrollierten thermonuklearen Reaktionen, Bd. 1, S. 249. Moskau 1958.

⁴ TRUBNIKOV, B. A., u. A. E. BASHANOVA [1957] in: M. A. LEONTOVICH, Plasmaphysik und das Problem der kontrollierten thermonuklearen Reaktionen, Bd. 3, S. 121. Moskau 1958.

⁵ TRUBNIKOV, B. A., u. V. S. KUDRYAVTSEV: Proc. 2nd Internat. Conf. Geneva 1958, vol. 34, p. 93.

⁶ DRUMMOND, W. E., and M. N. ROSENBLUTH: Phys. Fluids **3**, 45 (1960).

⁷ KVASNICA, J.: Czech. J. Phys. B **10**, 14 (1960).

⁸ KVASNICA, J.: Czech. J. Phys. B **10**, 261 (1960).

e - e -Strahlung zu berücksichtigen*, was zugleich bedeutet, daß die e - e -Strahlung, wenn sie wesentliche Beiträge liefert, überhaupt nur in relativistischer Berechnung interessieren kann**. Im Gegensatz zur e - i -Strahlung, die nur von der Energie des einen beteiligten Elektrons abhängt, hängt die e - e -Strahlung von drei Parametern ab, den beiden Elektronenenergien und dem Winkel zwischen ihren Bewegungsrichtungen, was die Rechnung im relativistischen Fall erheblich erschwert. Entscheidend ist dabei eine korrekte Unterscheidung zwischen drei ausgezeichneten Bezugssystemen, nämlich dem Laborsystem, in dem sich beide Elektronen bewegen, dem „Targetsystem“, in dem eines der beiden Elektronen ruht, und dem Schwerpunktsystem***. Eine weitere Erschwerung besteht darin, daß es für den Wirkungsquerschnitt der e - e -Strahlung kein Korrelat zur Bethe-Heitler-Formel der e - i -Strahlung, sondern nur Formeln für die beiden Grenzfälle, den nichtrelativistischen (NR) und den extremrelativistischen (ER) gibt¹⁰, so daß man, wenn man nicht erst die äußerst komplizierte Auswertung des allgemeinen Falles¹¹ vornehmen möchte, auf eine geeignete Interpolation zwischen den beiden Grenzfällen angewiesen ist[†]. — Es ist das Ziel der vorliegenden Arbeit,

* Das wird von R. L. GLUCKSTERN, M. H. HULL jr. u. G. BREIT⁹ nicht beachtet, die unter Berücksichtigung relativistischer Einflüsse das Bremsstrahlungsphotonenspektrum bis $h\nu = 75$ keV berechnen, dabei aber nur die e - i -Strahlung in Betracht ziehen.

** In diesem Punkte ist die von ZUBAREV u. KLIMOV³ angegebene Formel für die Bremsstrahlungsverluste bis 500 keV offenbar nicht konsequent, wie wir noch zeigen werden. (Die Formel wird ohne Hinweis auf ihre Ableitung angeführt; es wird lediglich erwähnt, daß sie sowohl die e - i - als auch die e - e -Strahlung erfaßt.)

*** In dieser Hinsicht verfährt sowohl W. B. THOMPSON² als auch J. KVASNICA⁸ unkorrekt. Bei letzterem ergibt sich dadurch im extremrelativistischen Fall eine um eine Potenz zu niedrige Abhängigkeit der e - e -Strahlung von der Temperatur.

† Nachdem schon mehrfach falsche e - e -Strahlungswirkungsquerschnitte in der Literatur mitgeteilt worden sind (vgl. etwa die Einleitung bei G. M. GARIBYAN¹⁰), so daß z. B. die Arbeit von W. B. THOMPSON² auf einem von J. JOSEPH und F. ROHRlich¹² als fehlerhaft nachgewiesenen Wirkungsquerschnitt von M. L. G. REDHEAD¹³ basiert, ist es nicht überflüssig, darauf hinzuweisen, daß im NR-Falle GARIBYAN seinen Wirkungsquerschnitt durch einen Vergleich mit dem von B. K. FEDYUSHIN¹⁴ im Anschluß an eine Arbeit von E. M. LIFSHITS¹⁵ ebenfalls in der Bornschen Näherung quantenmechanisch gewonnenen Wirkungsquerschnitt kontrollieren kann, und daß GARIBYANS Wirkungsquerschnitt im ER-Falle durch das Ergebnis der Weizsäcker-Williams-Methode¹⁶ bestätigt wird.

⁹ GLUCKSTERN, R. L., M. H. HULL jr. and G. BREIT: US. AEC-Report AEC-D-4246, [1953] (1957).

¹⁰ GARIBYAN, G. M.: J. Exp. Theor. Phys. USSR. **24**, 617 (1953).

¹¹ GARIBYAN, G. M.: Izv. A. N. Arm. SSR. **5**, No. 3 (1952).

¹² JOSEPH, J., and F. ROHRlich: Rev. Mod. Phys. **30**, 354 (1958).

¹³ REDHEAD, M. L. G.: Proc. Phys. Soc. Lond. A **66**, 196 (1953).

¹⁴ FEDYUSHIN, B. K.: J. Exp. Theor. Phys. USSR. **22**, 140 (1952).

¹⁵ LIFSHITS, E. M.: J. Exp. Theor. Phys. USSR. **18**, 562 (1948).

¹⁶ HEITLER, W.: The Quantum Theory of Radiation, 3. Aufl. Oxford 1954. Gl. (17) auf S. 418.

im Einklang mit dieser Charakterisierung der Problemstellung die totalen, d.h. die über alle Frequenzen integrierten e - i - und e - e -Bremsstrahlungsverluste eines Wasserstoffplasmas oberhalb von etwa 10 keV Temperatur zu berechnen, und zwar ohne dabei nicht abschätzbare Fehler in Kauf zu nehmen, wie sie z. B. bei einer Reihenentwicklung nach der reduzierten Temperatur $\tau \equiv kT/(mc^2)$ unvermeidlich sind*.

Bedingt durch den Schleier der Geheimhaltung, der in den letzten Jahren vielfach über die Plasmaphysik gebreitet worden ist, sind die Arbeiten^{2,3,7,8,9} voneinander unabhängig entstanden. Ein kritischer Vergleich wurde erstmals von C.F. WANDEL, T. HESSELBERG-JENSEN und D. KOFOED-HANSEN¹⁷ gegeben.

Das Weitere gründet sich auf folgende drei Annahmen:

(1) Das Elektronengas des Plasmas ist thermisch, so daß für die Elektronen eine Maxwell-Boltzmann-Verteilung anzunehmen ist.

(2) Man darf mit in erster Näherung geradlinigen Elektronenbahnen, also in der ersten Bornschen Näherung rechnen.

(3) Die Elektronendichte n ist so gering, daß Strahlung praktisch nur in Zweierstößen erzeugt wird.

Die Annahme (1) läßt sich nur im Hinblick auf eine bestimmte experimentelle Situation diskutieren.

Über die Annahme (2) ist bezüglich der e - i -Strahlung folgendes zu sagen: Die Bornsche Näherung empfiehlt sich, weil nur in dieser eine geschlossene sowohl nichtrelativistische als auch relativistische Elektronenenergien umfassende Formel für den Strahlungswirkungsquerschnitt in Gestalt der Bethe-Heitlerschen Formel zur Verfügung steht, die überdies den Vorteil hat, daß sie sich geschlossen über alle Frequenzen integrieren läßt**. Im NR-Bereich liegen mehrere Berechnungen der totalen e - i -Strahlung eines thermischen Plasmas auf Grund der dort exakt geltenden Sommerfeldschen Bremsstrahlungsformel vor^{18,19,20}, aus denen man entnehmen kann, daß bereits bei $kT = 10$ keV der Fehler der Bornschen Näherung nur noch 3,9% beträgt, um darüber wie \sqrt{kT} abzunehmen. Im ER-Bereich ist die Bornsche Näherung bis auf einen

* Derartiger Reihenentwicklungen bedienen sich GLUCKSTERN, HULL und BREIT⁹ und in weniger systematischer Weise auch J. KVASNICA⁸, der auch deswegen ein unkorrektes Resultat erhält.

** Vgl. W. HEITLER¹⁶, S. 251f.

¹⁷ WANDEL, C.F., T. HESSELBERG-JENSEN and O. KOFOED-HANSEN: Nucl. Instr. Methods **4**, 249 (1959).

¹⁸ HETTNER, G.: Z. Physik **150**, 182 (1958).

¹⁹ KARZAS, W. J., and R. LATTER: The RAND-Corporation Research Memorandum RM-2010-AEC, 1957, Revised Oct. 3, 1958.

²⁰ GREENE, J.: Astrophys. J. **130**, 693 (1959).

Fehler der Ordnung $(Z/137)^2$ korrekt*, wenn Z die Ladungszahl der Ionen bedeutet. Diese Angaben sind mit dem etwa 0,5% nicht überschreitenden numerischen Fehler zu vergleichen, der von der Ersetzung des Bethe-Heitlerschen Strahlungswirkungsquerschnitts durch einen Näherungsausdruck in unserer Rechnung herrührt. — Abgesehen von den höheren Bornschen Näherungen wären im Prinzip auch noch Strahlungskorrekturen zu berücksichtigen, die aber in unserem Falle sicher vernachlässigbar sind*.

Was die Annahme (2) in bezug auf die e - e -Strahlung anbelangt, so liegen für diese überhaupt nur in der Bornschen Näherung Wirkungsquerschnittsberechnungen vor^{10,11,14}. Für den NR-Fall zeigen wir im Anhang auf halbklassischem Wege, daß oberhalb von $kT = 10$ keV der Fehler der Bornschen Näherung noch kleiner als bei der e - i -Strahlung ist. Im ER-Fall ist der Fehler wie bei der e - i -Strahlung von der Größenordnung 137^{-2} . Die ausschlaggebende Unsicherheit wird bei uns also der im ungünstigsten Fall schätzungsweise nicht mehr als etwa $\pm 8\%$ betragende Fehler der Interpolation zwischen dem NR- und dem ER-Fall sein. (Diese verhältnismäßig geringe Interpolationsungenauigkeit läßt sich dadurch erhalten, daß man die Potenz-Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts von der kinetischen Energie im Schwerpunktssystem betrachtet, und sich dabei wegen der physikalischen Ähnlichkeit an den Verhältnissen bei der e - i -Strahlung orientiert.)

Damit nur Zweierstöße, und zwar Coulombsche Zweierstöße, eine Rolle spielen, muß die für die Bremsstrahlungserzeugung charakteristische Länge $\hbar/\sqrt{2mkT}$ erstens klein gegen den mittleren Teilchenabstand $n^{-1/3}$ und zweitens auch klein gegen die Debye-Länge $\lambda_D = \sqrt{kT/(4\pi ne^2)}$ sein, die ein Maß für die Reichweite der Coulombschen Wechselwirkung ist.

2. Die Elektron-Ion-Bremsstrahlung

Es wird ein vollständig ionisiertes Wasserstoffplasma mit n Wasserstoffionen und n Elektronen in der Volumeneinheit betrachtet. Im Hinblick auf die Strahlungserzeugung darf dabei von vollständiger Ionisation bei einem reinen Wasserstoffplasma erst von einigen 100 eV Elektronentemperatur ab gesprochen werden, da erst dann die Strahlungsarten, bei denen gebundene Elektronenzustände beteiligt sind (z. B. die Rekombinationsstrahlung), hinter der Bremsstrahlung zurücktreten. Die Wasserstoffionen werden als praktisch unendlich schwer und somit als ruhend angenommen.

Nach der über alle Richtungen und Photonenenergien integrierten Formel von BETHE und HEITLER gibt ein Elektron der Energie E beim

* Vgl. W. HEITLER¹⁶, S. 254.

Durchfliegen eines Ionengases der Dichte n und der Ladungszahl Z pro Sekunde die Energie

$$\left. \begin{aligned} S &= \frac{2}{3} n Z^2 \Phi_0 m c^3 G(\varepsilon), \\ \Phi_0 &\equiv \frac{e^2}{\hbar c} \left(\frac{e^2}{m c^2} \right)^2 = 5,79 \cdot 10^{-28} \text{ cm}^2 \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

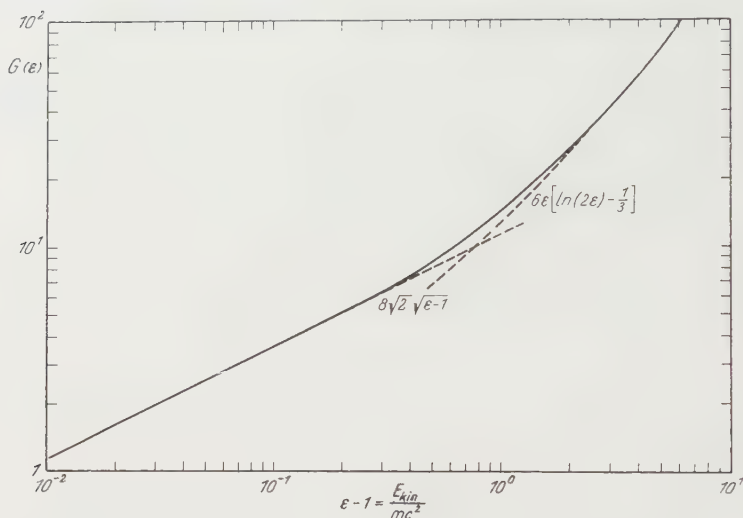


Fig. 1. Die Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnittes der Elektron-Ion-Strahlung

ab*, wobei $G(\varepsilon)$ folgende Funktion von $\varepsilon \equiv E/(mc^2)$ bedeutet:

$$\left. \begin{aligned} G(\varepsilon) &= \left(6\varepsilon + \frac{2}{\varepsilon} \right) \ln \left(\varepsilon + \sqrt{\varepsilon^2 - 1} \right) - \\ &\quad - \left(\frac{4}{\sqrt{\varepsilon^2 - 1}} + \frac{3}{\varepsilon} \right) [\ln \left(\varepsilon + \sqrt{\varepsilon^2 - 1} \right)]^2 - \\ &\quad - 2 \sqrt{\varepsilon^2 - 1} - \frac{3}{\varepsilon} \text{Sp} \left(-2 \sqrt{\varepsilon^2 - 1} \left(\varepsilon + \sqrt{\varepsilon^2 - 1} \right) \right); \end{aligned} \right\} \quad (1a)$$

die Funktion Sp ist das manchmal als Spencesche Funktion bezeichnete Integral

$$\text{Sp}(z) \equiv \int_0^z \frac{-\ln|1-\zeta|}{\zeta} d\zeta. \quad (2)$$

In Fig. 1 ist die Funktion $G(\varepsilon)$ dargestellt; für ihre Berechnung wurden die von K. MITCHELL²¹ angegebenen Formeln und Tabellen der Spence-

* Vgl. W. HEITLER¹⁶, S. 251f.

²¹ MITCHELL, K.: Phil. Mag. [7] 40, 351 (1949).

Funktion benutzt. In den Grenzfällen $\varepsilon - 1 \ll 1$ und $\varepsilon \gg 1$ gilt:

$$G(\varepsilon) \rightarrow \begin{cases} 8\sqrt{2}\sqrt{\varepsilon-1}, & \varepsilon - 1 \ll 1; \\ 6\varepsilon \left(\ln(2\varepsilon) - \frac{1}{3} \right), & \varepsilon \gg 1. \end{cases} \quad (3a)$$

$$(3b)$$

(3a) drückt aus, daß im NR-Fall die e - i -Strahlung proportional dem Impuls des Elektrons ist. (3b) ergibt sich im wesentlichen auch mit der anschaulichen Methode von WEIZSAECKER und WILLIAMS*, die, einen Gedanken von E. FERMI²² übernehmend, die Bremsstrahlung als Compton-Streuung der „virtuellen“ Photonen, welche das Feld einer bewegten Ladung darstellen, an einer ruhenden Ladung auffaßt.

Um die von 1 cm^3 Wasserstoffplasma der Elektronentemperatur kT pro Sekunde in den vollen Raumwinkel 4π emittierte e - i -Strahlungsenergie W_{ei} zu erhalten, hat man $Z=1$ zu setzen und über S mit der relativistischen Maxwell-Verteilung der Elektronen zu integrieren, die bei Einführung der reduzierten Temperatur $\tau \equiv kT/(mc^2)$

$$F(\varepsilon) d\varepsilon = \frac{n}{\tau e^{1/\tau} K_2\left(\frac{1}{\tau}\right)} \varepsilon \sqrt{\varepsilon^2 - 1} e^{-\frac{1}{\tau}(\varepsilon-1)} d\varepsilon \quad (4)$$

lautet (K_2 ist die modifizierte Hankelsche Funktion vom Index 2), so daß:

$$W_{ei}(\tau) = \frac{2}{3} \frac{n^2 \Phi_0 mc^3}{\tau e^{1/\tau} K_2\left(\frac{1}{\tau}\right)} \int_1^\infty d\varepsilon \varepsilon \sqrt{\varepsilon^2 - 1} e^{-\frac{1}{\tau}(\varepsilon-1)} G(\varepsilon). \quad (5)$$

Für $\tau \ll 1$ vereinfacht sich (5) mit (3a) und dem entsprechenden NR-Grenzfall der Maxwell-Verteilung $F(\varepsilon)$ zu der oft zitierten Formel

$$W_{ei} = \frac{32}{3} \sqrt{\frac{2}{\pi}} n^2 \Phi_0 mc^3 \sqrt{\tau}, \quad (6)$$

die sich von der in der sog. „weichen“ oder Kramersschen Näherung berechneten nur durch einen Faktor $2\sqrt{3/\pi}$ unterscheidet.

Bei $\tau \gg 1$ erhält man mit (3b) und dem ER-Grenzfall von $F(\varepsilon)$:

$$W_{ei} = 12 n^2 \Phi_0 mc^3 \tau \left[\ln(2\tau) + \left(\frac{3}{2} - C \right) \right] \quad (7)$$

($C=0,5772 \dots$ ist die Eulersche Konstante).

Im allgemeinen Fall läßt sich das Integral (5) nicht mehr geschlossen auswerten. Wir behelfen uns damit, daß wir in (5) für $G(\varepsilon)$ eine geeignete

* Vgl. etwa W. HEITLER¹⁶, S. 414 ff.

²² FERMI, E.: Z. Physik **29**, 315 (1924).

Ersatzfunktion $\tilde{G}(\varepsilon)$ substituieren. Dazu machen wir den Ansatz

$$\tilde{G}(\varepsilon) = \begin{cases} 8\sqrt{\varepsilon^2-1} [1 + a_1(\varepsilon-1) + a_2(\varepsilon-1)^2 + a_3(\varepsilon-1)^3] & \text{für } 1 \leq \varepsilon \leq 2, \\ \frac{\varepsilon}{\sqrt{\varepsilon^2-1}} [6\varepsilon \ln(2\varepsilon) - 2\varepsilon - 0,2900] & \text{für } \varepsilon > 2; \end{cases} \quad (8)$$

a_1 wird gleich dem entsprechenden Koeffizienten der analogen Entwicklung von $8\sqrt{2}\sqrt{\varepsilon-1}$ gesetzt, da sich $G(\varepsilon)$ nach Fig. 1 stark an $8\sqrt{2}\sqrt{\varepsilon-1}$ anschmiegt; a_2 und a_3 werden so bestimmt, daß \tilde{G} in den Punkten $\varepsilon-1=0,2$ und $\varepsilon-1=0,8$ mit G übereinstimmt. Das ergibt:

$$a_1 = -\frac{1}{4}, \quad a_2 = 0,44935, \quad a_3 = -0,16577. \quad (8a)$$

Mit $\tilde{G}(\varepsilon)$ an Stelle von $G(\varepsilon)$ läßt sich das Integral in (5) bequem auswerten; es wird:

$$W_{ei}(\tau) = \frac{2}{3} n^2 \Phi_0 m c^3 \frac{J_1(\tau) + J_2(\tau)}{\tau e^{1/\tau} K_2(1/\tau)}, \quad (9)$$

wobei

$$J_1(\tau) \equiv \int_1^2 d\varepsilon \varepsilon \sqrt{\varepsilon^2-1} e^{-(\varepsilon-1)/\tau} \tilde{G}(\varepsilon) = \left. \begin{aligned} &= 8[2\tau^2 + 5\tau^3 + 6,8922\tau^4 + 18,396\tau^5 - 5,7552\tau^6 - \\ &\quad - 119,35\tau^7 - e^{-1/\tau}(6,2015\tau + 12,278\tau^2 + 15,158\tau^3 + \\ &\quad + 2,5184\tau^4 - 47,036\tau^5 - 125,11\tau^6 - 119,35\tau^7)] \end{aligned} \right\} \quad (9a)$$

und

$$J_2(\tau) \equiv \int_2^\infty d\varepsilon \varepsilon \sqrt{\varepsilon^2-1} e^{-(\varepsilon-1)/\tau} \tilde{G}(\varepsilon) = \left. \begin{aligned} &= e^{-1/\tau}(49,382\tau + 98,653\tau^2 + 135,23\tau^3 + 103,91\tau^4 - \\ &\quad - 36\tau^4 e^{1/\tau} Ei(-2/\tau); \end{aligned} \right\} \quad (9b)$$

es ist:

$$-Ei(-x) \equiv \int_x^\infty \frac{e^{-t}}{t} dt.$$

Da sich $\tilde{G}(\varepsilon)$ selbst an der ungünstigsten Stelle von $G(\varepsilon)$ um nur etwa $1/2\%$ unterscheidet, darf die in Fig. 2 dargestellte Formel (9) im Rahmen der Bornschen Näherung als praktisch exakt betrachtet werden. Von J. KVASNICA wird in Gestalt von Gl. (24) und (25) seiner zweiten Arbeit⁸ ein Resultat mitgeteilt, das stark von dem obigen abweicht: Nach KVASNICAS Gleichung, die übrigens unter genau den gleichen Voraussetzungen wie (9) abgeleitet wird, müßte die Strahlung von kleinen

τ -Werten herkommend zunächst kleiner werden, als es die nichtrelativistische Formel (6) verlangen würde; erst ab $\tau \approx 0,2$ würden die relativistischen Korrekturen positiv. Das ist aber sicher nicht möglich, da in dem Integral (5) einerseits $G(\varepsilon)$ mit wachsendem ε größer wird, als es nach dem NR-Grenzfall (3a) sein sollte, und da sich andererseits die relativistische Maxwell-Verteilung mit wachsendem τ nach höheren Energiewerten hin verbreitert.

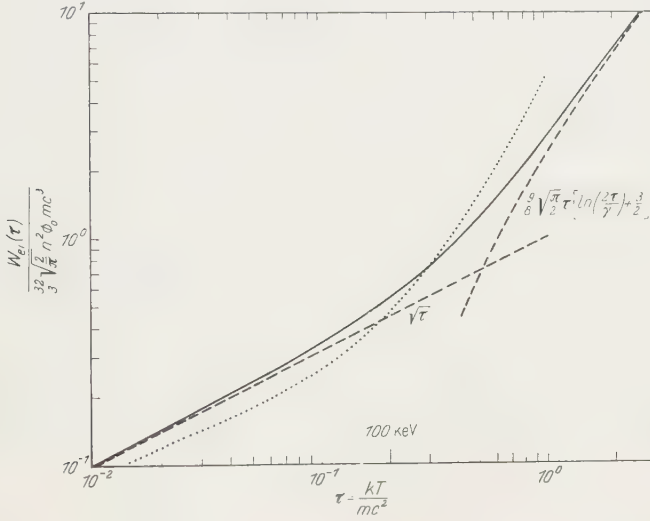


Fig. 2. Die Temperaturabhängigkeit der Elektron-Ion-Strahlungsverluste. Erklärung: Die strichlierten Kurven bedeuten das nichtrelativistische und das extremrelativistische Verhalten nach Gl. (6) und (7) ($\ln \gamma = C - \text{Eulersche Konstante}$). Die punktierte Kurve stellt das Resultat von J. KVASNICA⁸ dar

3. Die Elektron-Elektron-Bremsstrahlung

Die totale Strahlungsleistung, die von zwei wechselwirkenden Elektronen emittiert wird, hängt nur von ihrer kinetischen Gesamtenergie E'_{kin} im Schwerpunktsystem, und nicht von der Geschwindigkeit \mathfrak{B} ihres Schwerpunktes gegenüber dem Laborsystem ab. Wenn nämlich im Schwerpunktsystem $Z' d\Omega' dk'$ Photonen der Energie k' in der Richtung e' in das Raumwinkelement $d\Omega'$ emittiert werden, so sind das vom Laborsystem aus gesehen pro Zeiteinheit $\frac{1}{\sqrt{1 - (\mathfrak{B}/c)^2}} \cdot Z' d\Omega' dk'$ Photonen der Energie $k = k'(1 + e' \cdot \mathfrak{B}/c) / \sqrt{1 - (\mathfrak{B}/c)^2}$; die totale Strahlungsleistung im Laborsystem ist also gleich

$$\int_0^{E'_{\text{kin}}} dk' k' \oint d\Omega' Z' + \frac{1}{c} \int_0^{E'_{\text{kin}}} dk' k' \oint d\Omega' Z' e' \cdot \mathfrak{B},$$

woraus die Behauptung folgt, da der zweite Summand wegen $Z'(-e') = Z'(e')$ verschwindet. Demnach stellt sich die totale e - e -Bremsstrahlungsleistung W_{ee} , die von der Volumeneinheit ausgeht, so dar:

$$W_{ee} = \frac{n}{2} \langle \langle S(E'_{\text{kin}}(p^{(1)}, p^{(2)})) \rangle \rangle_{1/2}, \quad (10)$$

wobei S die totale Strahlungsleistung ist, die aus der Wechselwirkung eines Elektrons vom Impuls $p^{(1)}$ mit einem Elektronenstrom der Teilchendichte n und des Einzelelektronenimpulses $p^{(2)}$ resultiert; die doppelte eckige Klammer bedeutet die Mittelung mit den zwei relativistischen Maxwell-Verteilungen der Impulse $p^{(1)}$ und $p^{(2)}$; der Faktor $\frac{1}{2}$ berücksichtigt, daß jede Zweielektronenkombination nur einmal gezählt werden darf. Die Aufgabe besteht jetzt darin, einen geeigneten Ausdruck für den e - e -Strahlungswirkungsquerschnitt $S(E'_{\text{kin}})$ zu finden und diesen dann mit den zwei relativistischen Maxwell-Verteilungen der Impulse $p^{(1)}$ und $p^{(2)}$ zu mitteln*.

a) Der totale e - e -Strahlungswirkungsquerschnitt $S(E'_{\text{kin}})$. Für die e - e -Strahlung besitzt man im Gegensatz zur e - i -Strahlung noch keinen expliziten Ausdruck für $S(E'_{\text{kin}})$, der von nichtrelativistischen bis zu extremrelativistischen Energien E'_{kin} reicht. Man hat vielmehr nur die von G.M. GARIBYAN^{10,11} für die beiden Grenzfälle in der Bornschen Näherung aufgestellten Beziehungen zur Verfügung.

Im NR-Falle erhält G.M. GARIBYAN¹⁰ für den bezüglich der Photonenenergie \hbar differentiellen Wirkungsquerschnitt

$$d\sigma_k = \frac{4}{15} \Phi_0 \left\{ \frac{1-x}{x} \times \left[17 - \frac{3x^2}{(2-x)^2} - \frac{12(2-x)^4 - 7x^2(2-x)^2 - 3x^4}{(1-x)(2-x)^3} \ln \frac{1+\sqrt{1-x}}{\sqrt{x}} \right] dx \right\} \quad (11)$$

$(x \equiv \hbar/E'_{\text{kin}})$,

ein Resultat, das früher schon von B.K. FEDYUSHIN¹⁴ quantenmechanisch nach der „Methode der Matrixelemente“ gewonnen worden war. Danach ergibt sich im NR-Falle für die e - e -Strahlungsleistung eines Elektronenstromes der Dichte n , der sich mit der Relativgeschwindigkeit v_0 gegen ein bestimmtes Elektron bewegt:

$$S_{\text{NR}} = C_F n \Phi_0 E'_{\text{kin}} v_0 \quad (12)$$

($E'_{\text{kin}} = mv_0^2/4$), wobei

$$C_F = \frac{1}{\Phi_0} \int_{x=0}^{x=1} x d\sigma_k(x) \quad (12a)$$

$$= \frac{4}{15} \left(91 + \frac{2}{3} - \frac{7}{12} \pi^2 \right) = 7,9951 \dots \quad (12b)$$

* Im Schwerpunktsystem gemessene Größen werden konsequent mit einem Strich versehen.

ist*. Bei der Berechnung von C_F hat man gewisse von K. MITCHELL²¹ mitgeteilte Formeln der Spence-Funktion zu berücksichtigen [Gln. (2.3), (3.5), (9.4) und (9.6) bei MITCHELL].

Im ER-Falle findet G.M. GARIBYAN:

$$S_{ER} = 4n \Phi_0 E^{(1)*} c \left[\ln \left(2 \frac{E^{(1)*}}{mc^2} \right) - \frac{1}{3} = 0,9 \right]; \quad (13)$$

hier ist $E^{(1)*}$ die Energie des ersten Elektrons, wenn das zweite ruht („Target-System“). Dieser Ausdruck ist in bester Übereinstimmung mit dem Resultat, das man nach der Methode von WEIZSAECKER und WILLIAMS erhält (vgl. W. HEITLER¹⁶ auf S. 418). Nun gilt aber allgemein für die Gesamtenergie im Schwerpunktsystem

$$E' = \left\{ \sqrt{2} \left[\sqrt{(mc^2)^2 + E^{(1)} E^{(2)}} - c^2 p^{(1)} \cdot p^{(2)} \right] \right\} \quad (14)$$

so daß:

$$E' = \sqrt{2} mc^2 \sqrt{m^2 c^4 + E^{(1)*}}. \quad (15)$$

Im ER-Falle wird dann

$$2 \frac{E^{(1)*}}{mc^2} \approx (2\varepsilon')^2 \quad (16)$$

mit

$$\varepsilon' = \frac{E'}{2mc^2} = \frac{2mc^2 + E'_{kin}}{2mc^2}, \quad (17)$$

Es gilt also:

$$S(\varepsilon') = 2^{\frac{5}{2}} C_F n \Phi_0 m c^3 H(\varepsilon') \quad (18)$$

mit:

$$H(\varepsilon') \rightarrow \begin{cases} H_{NR}(\varepsilon') \equiv (\varepsilon' - 1)^{\frac{3}{2}} & \text{für } \varepsilon' - 1 \ll 1, \\ H_{ER}(\varepsilon') = \frac{2^{\frac{3}{2}}}{C_F} \varepsilon'^2 \left[\ln(2\varepsilon') - \frac{1}{6} - 0,45 \right] & \text{für } \varepsilon' \gg 1. \end{cases} \quad (18a)$$

$$H(\varepsilon') \rightarrow \begin{cases} H_{NR}(\varepsilon') \equiv (\varepsilon' - 1)^{\frac{3}{2}} & \text{für } \varepsilon' - 1 \ll 1, \\ H_{ER}(\varepsilon') = \frac{2^{\frac{3}{2}}}{C_F} \varepsilon'^2 \left[\ln(2\varepsilon') - \frac{1}{6} - 0,45 \right] & \text{für } \varepsilon' \gg 1. \end{cases} \quad (18b)$$

Fig. 3 zeigt die beiden Funktionen $H_{NR}(\varepsilon')$ und $H_{ER}(\varepsilon')$. Bedenkt man, daß wegen der physikalischen Ähnlichkeit von e - i - und e - e -Strahlung $H(\varepsilon')$ einen ähnlichen Verlauf wie $G(\varepsilon)$ haben muß, so bleibt bei einem Vergleich mit $G(\varepsilon)$ (Fig. 1) für eine Interpolation zwischen H_{NR} und H_{ER} (ausgezogene Kurve in Fig. 3) nur noch eine geringe Willkür von schätzungsweise $\pm 5\%$ im ungünstigsten Fall.

* B. K. FEDYUSHIN gibt für C_F den Wert 8,1 an.

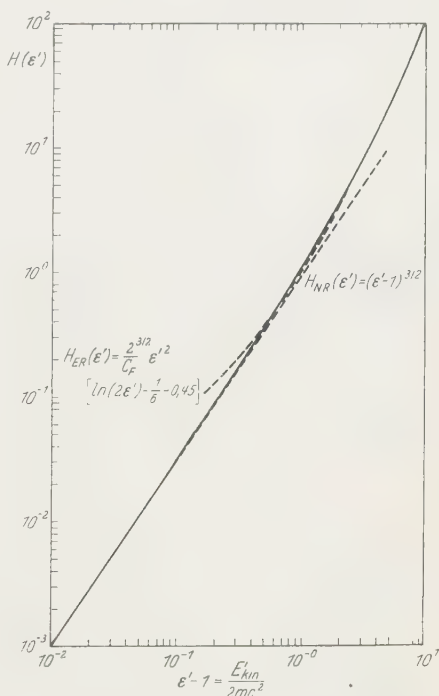


Fig. 3. Die Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnitts der Elektron-Elektron-Strahlung

b) **Maxwell-Mittelung von $\mathbf{S}(\mathbf{E}'_{\text{kin}})$.** Die Gl. (10) lautet explizit, wenn man

$$q^{(k)} = \frac{p^{(k)}}{mc}, \quad k = 1, 2, \quad (19)$$

$$\xi = \frac{\mathbf{p}^{(1)} \cdot \mathbf{p}^{(2)}}{p^{(1)} p^{(2)}} \quad (20)$$

substituiert:

$$\left. \begin{aligned} W_{ee}(\tau) = \frac{n^2}{4} \frac{1}{\left[\tau e^{1/\tau} K_2\left(\frac{1}{\tau}\right) \right]^2} \int_0^\infty d q^{(1)} \int_0^\infty d q^{(2)} q^{(1)2} q^{(2)2} \times \\ \times e^{-\left(\sqrt{1+q^{(1)2}} + \sqrt{1+q^{(2)2}} - 2 \right) / \tau} \int_{-1}^1 d \xi S\left(\varepsilon'(q^{(1)}, q^{(2)}, \xi) \right). \end{aligned} \right\} \quad (21)$$

Im NR-Falle läßt sich (21) bequem auswerten, indem man an Stelle von $\mathbf{p}^{(1)}$ und $\mathbf{p}^{(2)}$ den Gesamtimpuls $\mathfrak{P} = \mathbf{p}^{(1)} + \mathbf{p}^{(2)}$ und den Relativimpuls $\mathbf{p}'_0 = \mathbf{p}^{(1)} - \mathbf{p}^{(2)}$ einführt, denn die im Exponenten stehende kinetische Gesamtenergie wird dann die Summe von Schwerpunktsenergie und kinetischer Energie im Schwerpunktsystem, während die Funktionaldeterminante der Substitution wegen deren Linearität eine Konstante wird. In dem uns bei (21) interessierenden allgemeinen Fall hätte die Substitution $\mathbf{p}^{(1)}, \mathbf{p}^{(2)} \rightarrow \mathbf{p}'_0, \mathfrak{P}$ aber keinen der beiden Vorteile.

Um den Exponenten einfach werden zu lassen, wird zunächst

$$t = \frac{1}{2} \left(\sqrt{1+q^{(1)2}} + \sqrt{1+q^{(2)2}} \right) - 1 \quad (22a)$$

gesetzt. Die zweite Variable wird so gewählt, daß die Funktionaldeterminante und das Integrationsgebiet in der t - s -Ebene möglichst einfach werden, nämlich:

$$s = \frac{1}{2} \left(\sqrt{1+q^{(1)2}} - \sqrt{1+q^{(2)2}} \right), \quad (22b)$$

so daß

$$\frac{\partial(q^{(1)}, q^{(2)})}{\partial(t, s)} = \frac{2}{q^{(1)} q^{(2)}} [(1+t)^2 - s^2]$$

gilt, womit

$$\int_0^\infty d q^{(1)} \int_0^\infty d q^{(2)} q^{(1)2} q^{(2)2} \dots = 2 \int_0^\infty d t \int_{-t}^t d s [(1+t)^2 - s^2] q^{(1)} q^{(2)} \dots \quad (23)$$

wird.

Gemäß (14) ist aber

$$2\varepsilon'^2 = 1 + \sqrt{1+q^{(1)2}} \sqrt{1+q^{(2)2}} - q^{(1)} q^{(2)} \xi,$$

so daß

$$q^{(1)} q^{(2)} \int_{-1}^1 d \xi H(\varepsilon') = 4 \int_{\varepsilon'_-}^{\varepsilon'_+} d \varepsilon' \varepsilon' H(\varepsilon') \quad (24)$$

mit:

$$\varepsilon' = \frac{1}{2} \left| 1 - (1+t)^2 - s^2 \pm \sqrt{t^2 - s^2} \right| (2+t)^2 - s^2. \quad (25)$$

Man erhält folglich

$$W_{ee}(\tau) = \frac{2^{\frac{3}{2}} C_F n^2 \Phi_0 m c^3}{\left[\tau e^{1/\tau} K_2\left(\frac{1}{\tau}\right) \right]^2} \int_0^\infty dt e^{-\frac{t}{\tau/2}} U(t), \quad (26)$$

wobei:

$$U(t) = 4 \int_{-t}^t ds [(1+t)^2 - s^2] \int_{\varepsilon'_-}^{\varepsilon'_+} d\varepsilon' \varepsilon' H(\varepsilon'). \quad (26a)$$

Das Auftreten von $\tau/2$ in (26) drückt aus, daß es im Falle der e - e -Strahlung, bei der zwei Elektronen beteiligt sind, naturgemäßer wäre, $kT/(2mc^2)$ als reduzierte Temperatur einzuführen.

Da wir $H(\varepsilon')$ nicht kennen, hätten wir jetzt in (26a) einen in der oben angegebenen Weise durch Interpolation gewonnenen Näherungsausdruck für $H(\varepsilon')$ einzusetzen. Wir können aber Rechenarbeit einsparen, wenn wir die Interpolation an eine etwas spätere Stelle der Rechnung verlegen, indem wir zunächst $H_{NR}(\varepsilon')$ für $H(\varepsilon')$ einsetzen und damit an Stelle von $U(t)$ die Funktion

$$U_{NR}(t) = 8 \int_{-t}^t ds [(1+t)^2 - s^2] \left(\frac{1}{2} x^{\frac{3}{2}} + \frac{1}{5} x^{\frac{5}{2}} \right) \Big|_{x=\varepsilon'_+-1}^{x=\varepsilon'_+-1} \quad (27)$$

und analog mit $H_{ER}(\varepsilon')$ eine Funktion

$$U_{ER}(t) = \frac{1}{C_F \sqrt{2}} \int_{-t}^t ds [(1+t)^2 - s^2] x (\ln x - 0,6941) \Big|_{x=\varepsilon'_+-1}^{x=\varepsilon'_+-1} \quad (28)$$

berechnen, um dann $U(t)$ als zwischen $U_{NR}(t)$ und $U_{ER}(t)$ in qualitativ der gleichen Weise interpolierende Funktion zu bestimmen, wie es $H(\varepsilon')$ zwischen $H_{NR}(\varepsilon')$ und $H_{ER}(\varepsilon')$ tut. — Vorher mögen aber die beiden Grenzfälle $\tau \ll 1$ und $\tau \gg 1$ betrachtet werden.

α) *Der NR-Fall* ($\tau \ll 1$). Bei kleinem τ tragen zu dem Integral in (26) im wesentlichen nur kleine t -Werte bei. Unter Berücksichtigung, daß dann $\varepsilon'_\pm - 1 \approx \frac{1}{2}(t \pm \sqrt{t^2 - s^2})$ ist, wird so:

$$\left. \begin{aligned} U_{NR}(t) &\approx \frac{1}{5} 2^{\frac{3}{2}} t^{\frac{5}{2}} \int_0^1 dx \left[(1 + \sqrt{1-x^2})^{\frac{3}{2}} - (1 - \sqrt{1-x^2})^{\frac{3}{2}} \right] \\ &= \frac{2^8}{105} t^{\frac{5}{2}}, \quad t \gg 1, \end{aligned} \right\} \quad (29)$$

so daß:

$$W_{ee} \approx \frac{4}{\sqrt{\pi}} C_F n^2 \Phi_0 m c^3 \tau^{\frac{3}{2}}, \quad \tau \ll 1. \quad (30)$$

$\beta)$ Der ER-Fall ($\tau \gg 1$). Bei großem τ spielen auch nur große t -Werte eine Rolle, so daß man $\varepsilon'_+ \approx \sqrt{t^2 - s^2}$ und $\varepsilon'_- \approx 0$ annehmen kann.

Damit wird:

$$U_{\text{ER}}(t) \approx \frac{\sqrt{2}}{C_F} t^7 \int_0^1 dx \frac{x^3}{1-x} (\ln x - \ln 4 - 0,347 + 2 \ln t), \quad t \gg 1. \quad (31)$$

Nun gilt aber

$$\int_0^1 t^{x-1} (1-t)^{y-1} dt = \frac{\Gamma(x) \Gamma(y)}{\Gamma(x+y)}$$

und deshalb auch

$$\int_0^1 t^{x-1} (1-t)^{y-1} \ln t \, dt = \frac{\Gamma(x) \Gamma(y)}{\Gamma(x+y)} (\psi(x) - \psi(x+y))$$

($\psi(x) \equiv d \ln \Gamma(x) / dx$). Unter Beachtung von $\psi(n) = -C + 1 + \frac{1}{2} + \dots + \frac{1}{n-1}$ und $\psi\left(\frac{1}{2} \pm n\right) = -C - \ln 4 + 2\left(1 + \frac{1}{3} + \frac{1}{5} + \dots + \frac{1}{2n-1}\right)$, wobei C die Eulersche Konstante ist, wird so:

$$U_{\text{ER}}(t) \approx \frac{64 \sqrt{2}}{35 C_F} t^7 (\ln t - 0,240), \quad t \gg 1, \quad (32)$$

so daß:

$$W_{ee} \approx 36 n^2 \Phi_0 m c^3 \tau^2 (\ln \tau + 1,083), \quad \tau \gg 1. \quad (33)$$

Während J. KVASNICA⁷ für $\tau \ll 1$ einen praktisch mit unserer Gl. (30) übereinstimmenden Ausdruck erhält, findet er⁸ für $\tau \gg 1$ ein Resultat mit anderer τ -Abhängigkeit, was daran liegt, daß er nicht zwischen Target-System und Schwerpunktsystem unterscheidet.

$\gamma)$ Allgemeiner Fall. Zur Berechnung von $U_{\text{NR}}(t)$ wird

$$U_{\text{NR}}(t) = \frac{16}{5} t^{\frac{5}{2}} \int_0^1 dx h(x, t) \quad (34)$$

mit

$$h(x, t) \equiv \frac{1}{t} \left[\left(1 + \frac{1}{t}\right)^2 - x^2 \right] u^{\frac{5}{2}} \left(1 + \frac{5}{7} u\right) \Big|_{u=\varepsilon'_- - 1}^{u=\varepsilon'_+ - 1} \quad (34a)$$

geschrieben, wobei jetzt:

$$\varepsilon'_\pm = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{1 + (1+t)^2 - x^2 t^2 \pm t^2 \sqrt{1-x^2} \sqrt{\left(1 + \frac{2}{t}\right)^2 - x^2}}.$$

Für U_{ER} wird analog

$$U_{\text{ER}}(t) = \frac{16}{5} t^{\frac{5}{2}} \int_0^1 dx g(x, t) \quad (35)$$

mit

$$g(x, t) \equiv \frac{1}{\sqrt{t}} \left[\left(1 + \frac{1}{t} \right)^2 - x^2 \right] u(\ln u - 0,694) \Big|_{u=\epsilon'^4}^{u=t'^4} \quad (35a)$$

angesetzt. Die beiden Integrale über $h(x, t)$ und $g(x, t)$ wurden planimetrisch für eine Anzahl t -Werte bestimmt. Fig. 4 stellt die so gewonnenen Funktionen $U_{NR}(t)$ und $U_{ER}(t)$ dar. Die Interpolation zwischen diesen beiden Funktionen wird mit Hilfe des Ansatzes

$$U(t) = \frac{256}{105} t^{\frac{3}{2}} \left\{ 1 + a_1 t + a_2 t^2 + a_3 t^3 + \frac{3\sqrt{2}}{4C_F} t^{\frac{3}{2}} (\ln t - 0,240) \right\} \quad (36)$$

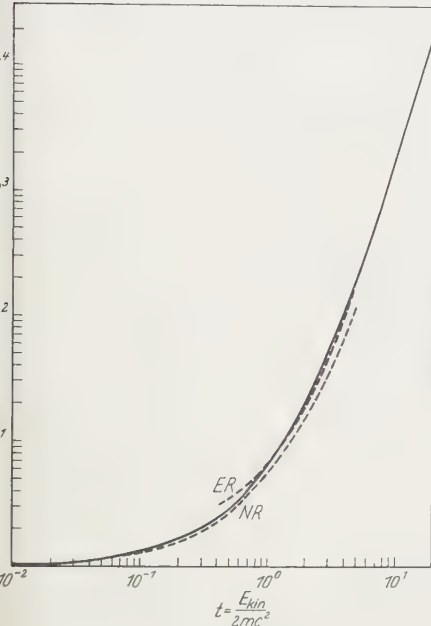


Fig. 4. Die Größe U als Funktion der kinetischen Energie

vorgenommen. Da $U(t)$ zwischen U_{NR} und U_{ER} qualitativ so verlaufen muß, wie es H zwischen

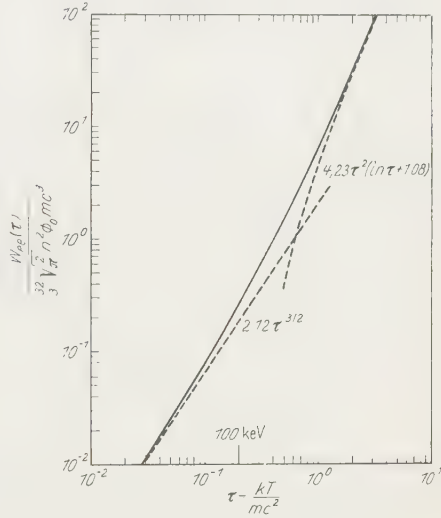


Fig. 5. Die Temperaturabhängigkeit der Elektron-Elektron-Strahlungsverluste

H_{NR} und H_{ER} tut, werden a_1 , a_2 und a_3 so gewählt, daß $\frac{105}{256} t^{-\frac{3}{2}} U(t)$ für $t=0,05$ den Wert 1,135, für $t=1$ den Wert 6,30 und für $t=5$ den Wert 198 annimmt:

$$a_1 = 2,554, \quad a_2 = 2,128, \quad a_3 = 0,6472. \quad (37)$$

Hiermit erhält man dann endlich (vgl. Fig. 5):

$$W_{eel}(\tau) = 2\sqrt{\pi} C_F n^2 \Phi_0 m c^3 \frac{\tau^{\frac{3}{2}}}{\left[\tau e^{1/\tau} K_2 \left(\frac{1}{\tau} \right)^2 \right]^2} \left\{ 1 + 5,75 \tau + 13,4 \tau^2 + \right. \\ \left. + 13,0 \tau^3 + 5,08 \tau^{\frac{3}{2}} (\ln \tau + 1,08) \right\}. \quad (38)$$

Im Rahmen der Bornschen Näherung dürfte der Fehler dieser Formel im ungünstigsten Bereich ($\tau \sim 1$) nicht größer als etwa $\pm 8\%$ sein.

4. Zusammenfassung

Die nach den Gln. (9) und (38) berechneten gesamten Bremsstrahlungsverluste eines reinen Wasserstoffplasmas mit thermischer Elektronengaskomponente von einer Temperatur oberhalb von 10^8 °K zeigt Fig. 6. Eine bequeme, die Gln. (9) und (38) im Temperaturbereich $\tau \leq 1$ mit einem auch im ungünstigsten Fall ($\tau \approx 0,2$) 3 % nicht übersteigenden

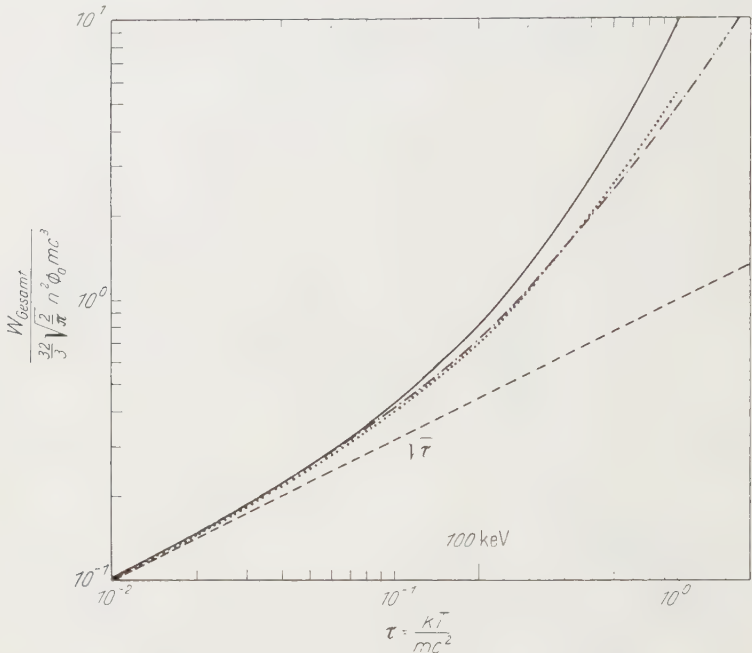


Fig. 6. Die Temperaturabhängigkeit der gesamten Bremsstrahlungsverluste. Erklärung: — Gesamt-bremsstrahlung; — · — · relativistisch gerechnete e - i -Strahlung plus nichtrelativistisch gerechnete e - e -Strahlung; ····· Gesamt-bremsstrahlung nach ZUBAREV und KLIMOV³; --- nichtrelativistisch gerechnete e - i -Strahlung

Fehler zusammenfassende Näherungsformel für die Gesamtbremsstrahlung $W_{\text{Ges}} = W_{ei} + W_{ee}$ lautet:

$$W_{\text{Ges}}(\tau) \approx \frac{32}{3} \sqrt{\frac{2}{\pi}} n^2 \Phi_0 m c^3 \times \left. \begin{aligned} & \times 15,78 \left[e^{\frac{1}{\tau}} K_0\left(\frac{1}{\tau}\right) - (0,949 - 0,620 \tau) e^{\frac{1}{\tau}} K_1\left(\frac{1}{\tau}\right) \right] \end{aligned} \right\} \quad (39)$$

Unterhalb von $\tau = 0,1$ ist dieser Ausdruck im Rahmen der Bornschen Näherung praktisch exakt; bei $\tau \sim 1$ ist er infolge der in der Gl. (38) für

W_{ee} steckenden numerischen Ungenauigkeiten mit einer Unsicherheit von etwa 10% behaftet*.

Aus Fig. 6 ersieht man, daß der von ZUBAREV und KLIMOV³ mitgeteilten Gesamtbremsstrahlung offenbar eine relativistisch gerechnete $e-i$ -Strahlung, jedoch eine nichtrelativistisch ermittelte $e-e$ -Strahlung zugrunde liegt.

Herrn Professor Dr. G. HETTNER danke ich herzlich für sein großes förderndes Interesse, und für viele hilfreiche Bemühungen. Für fruchtbare Diskussionen im Anfangsstadium der Arbeit bin ich Herrn Dr. D. PFIRSCH zu Dank verpflichtet. Herrn Dr. C. F. WANDEL danke ich sehr für mehrere briefliche Literaturhinweise, sowie für einen Vorabdruck des unter¹⁷ zitierten Aufsatzes. In besonderer Weise bin ich auch der FRIED. KRUPP WIDIA-FABRIK, Essen, verbunden, die mir die Fertigstellung dieser Arbeit ermöglichte. Ebenso möchte ich es nicht versäumen, der FRIED. KRUPP FACHBÜCHEREI meinen anerkennenden Dank für die teilweise sehr schwierige Beschaffung der Literatur zu sagen.

Anhang

Zur Frage der durch die Bornsche Näherung im nichtrelativistischen Falle bedingten Ungenauigkeit von W_{ei} und W_{ee}

Es soll hier vor allem der von der Bornschen Näherung herrührende Fehler des NR-Ausdruckes (30) für $W_{ee}(\tau)$ mit Hilfe einer durch die Unschärferelation korrigierten klassischen Betrachtung abgeschätzt werden. Zur Prüfung der Verlässlichkeit dieser Abschätzungsweise wird aber zunächst die $e-i$ -Strahlung besprochen, da für diese im NR-Gebiet exakte Berechnungen nach der Formel von A. SOMMERFELD zum Vergleich vorliegen.

a) Die Elektron-Ion-Strahlung. Ein Elektron, das an einem Ion vorbeifliegend von diesem momentan den Abstand r hat, strahlt momentan die Leistung

$$J = \frac{2}{3} \cdot \frac{e^6}{m^2 c^3} \frac{1}{r^4}$$

ab. Ist ϱ der Stoßparameter und v die Geschwindigkeit des Elektrons in großer Entfernung vom Ion, so berechnet sich die gesamte abgestrahlte Energie $\mathcal{E} = \int J dt$ zu

$$\mathcal{E} = \frac{4}{3} \frac{e^6}{m^2 c^3} \frac{1}{v} \int_{r_{\min}}^{\infty} \frac{dr}{r^3} \frac{1}{\sqrt{r^2 - 2 \frac{e^2}{m v^2} r - \varrho^2}}, \quad (\text{A.1})$$

wobei

$$r_{\min} \equiv \sqrt{\frac{e^4}{m^2 v^4} + \varrho^2} - \frac{e^2}{m v^2}$$

ist. Ein Ion, das sich in einem Elektronenstrom der Dichte n und der Geschwindigkeit v befindet, veranlaßt diesen, pro Zeiteinheit die Energie

$$S = n v 2\pi \int_{\varrho_{\min}}^{\infty} d\varrho \varrho \mathcal{E}(\varrho, v) \quad (\text{A.2})$$

* Man findet $e^x K_0(x)$ und $e^x K_1(x)$ im Buche von G. N. WATSON²³ tabuliert.

²³ WATSON, G. N.: A Treatise on the Theory of Bessel Functions. Cambridge 1922.

abzustrahlen; dabei ist $q_{\min} = \frac{a\hbar}{mv}$ (a ist von der Größenordnung 1), da q -Werte, die kleiner als etwa $\frac{\hbar}{mv}$ sind, aus einer klassischen Überlegung als sinnlos auszuscheiden sind. Vertauscht man in (A.1) die Reihenfolge der Integrationen, so erhält man:

$$S = \frac{8\pi}{3a} \frac{n\Phi_0 mc^3}{\sqrt{1-y^2}} \frac{c}{v} \int_1^\infty \frac{dx}{x^3} \left[\frac{1}{x^2} + \frac{2xy}{\sqrt{1-y^2-y}} - \frac{1}{(\sqrt{1+y^2-y})^2} \right] \quad (\text{A.3})$$

mit $y \equiv \frac{\alpha c}{av}$, wobei $\alpha \equiv \frac{e^2}{\hbar c}$ ist. Der Bornschen Näherung entsprechend entwickeln wir nun nach Potenzen von y , so daß:

$$S = \frac{2\pi^2}{3a} n\Phi_0 mc^3 \left(\frac{v}{c} + \frac{4}{\pi} \frac{\alpha}{a} + \dots \right). \quad (\text{A.4})$$

Im Wasserstoffplasma ist n zugleich auch die Ionendichte; berechnet man dann W_{ei} gemäß $W_{ei} = n \langle S \rangle_{\text{Maxwell}}$ und setzt $a = \pi^2/8$, so daß man in nullter Näherung Übereinstimmung mit der nullten quantenmechanischen Bornschen Näherung (6) erhält, so wird:

$$W_{ei}(\tau) = \frac{32}{3} \sqrt{\frac{2}{\pi}} n^2 \Phi_0 mc^3 \sqrt{\tau} \left(1 + 0,00472 \frac{1}{\sqrt{\tau}} + \dots \right). \quad (\text{A.5})$$

Hiernach würde die von der ersten Bornschen Näherung verursachte Korrektur bei $kT = 10$ keV etwa 3,4% betragen; tatsächlich beträgt der Fehler der nullten Bornschen Näherung bei dieser Temperatur etwa 3,9% (vgl. etwa J. GREENE²⁰). (Die nächste Näherung in unserer Rechnung würde bei $kT = 10$ keV nur noch einen zusätzlichen Beitrag von etwa 0,1% liefern.)

b) Die Elektron-Elektron-Strahlung. Nachdem sich die klassische Abschätzungsmethode bei der e - i -Strahlung als sehr zuverlässig erwiesen hat, wenden wir sie nun auch auf die e - e -Strahlung an. Der Umstand, daß die zwei an einem Strahlungszusammenstoß beteiligten Elektronen dem Ausschließungsprinzip unterworfen sind, ist kein Einwand, denn B. K. FEDYUSHIN¹⁴ hat gezeigt, daß die nichtrelativistische e - e -Strahlung durch das Ausschließungsprinzip nur um -10% verändert wird.

Die momentane Strahlungsleistung eines aus zwei Elektronen mit den Koordinaten $x_i^{(1)}$ und $x_i^{(2)}$ bestehenden Systems lautet²⁴

$$J = \frac{1}{180c^5} \sum_{i,j} (\ddot{Q}_{ij})^2, \quad (\text{A.6})$$

wobei

$$Q_{ij} = -\frac{e}{2} (3x_i x_j - r^2 \delta_{ij}) \quad (\text{A.6a})$$

bedeutet ($x_i \equiv x_i^{(1)} - x_i^{(2)}$; $r^2 = \sum_i x_i^2$). Unter Beachtung der Bewegungsgleichungen

$$\frac{m}{2} \ddot{x}_i = + \frac{e^2}{r^3} x_i$$

²⁴ LANDAU, L. D., and E. M. LIFSHITZ: The Classical Theory of Fields. London and Paris 1959.

ergibt sich mit $v_i \equiv \dot{x}_i$ und $v_r = \sum_i x_i v_i / r$:

$$(3 x_i x_j - r^2 \delta_{ij})^{***} = \frac{4e^2}{m} \frac{1}{r^3} \left[6(x_i v_j + v_i x_j) - 9 \frac{v_r}{r} x_i x_j - r v_r \delta_{ij} \right], \quad (\text{A.7})$$

so daß, wenn man noch $v_\varphi^2 = v^2 - v_r^2$ einführt:

$$J = \frac{2}{15} \frac{e^6}{m^2 c^5} \frac{1}{r^4} (v^2 + 11 v_\varphi^2) \star \quad (\text{A.8})$$

oder wenn man mittels des Energie- und des Drehimpulssatzes v und v_φ durch den Stoßparameter q und die Relativgeschwindigkeit v_0 ausdrückt:

$$J = \frac{2}{15} \frac{e^6}{m^2 c^5} \frac{1}{r^4} \left(v_0^2 - \frac{4e^2}{m r} + 11 \frac{q^2 v_0^2}{r^2} \right). \quad (\text{A.9})$$

Die gesamte von den beiden Elektronen bei ihrem Aneinandervorbeifliegen emittierte Energie wird

$$\mathcal{E} = \int J dt = \int \frac{J}{\sqrt{v_0^2 - \frac{4e^2}{m r} - \frac{q^2 v_0^2}{r^2}}} dr. \quad (\text{A.10})$$

Ein Elektron, das sich gegen einen Elektronenstrom der Dichte n mit der Relativgeschwindigkeit v_0 bewegt, veranlaßt diesen, zusammen mit jenem pro Zeiteinheit die Energie

$$S = n v_0 2\pi \int_{q_{\min}}^{\infty} dq \mathcal{E}(q, v_0) \quad (\text{A.11})$$

abzustrahlen, wobei analog zur e - i -Strahlung $q_{\min} = a\hbar / \left(\frac{m}{2} v_0 \right)$ ist. Nach Vertauschung der Integrationen in (A.11) wird dann:

$$S = \frac{40\pi}{9} n \frac{e^6}{m^2 c^5} \frac{v_0^2}{r_{\min}} \int_1^{\infty} \frac{dx}{x^3} \left\{ \sqrt{x^2 - 4 \frac{e^2}{m v_0^2 r_{\min}}} x - \left(\frac{q_{\min}}{r_{\min}} \right)^2 \times \right. \\ \left. \times \left[1 - \frac{4e^2}{m v_0^2 r_{\min}} \frac{1}{x} + \frac{11}{25} \left(\frac{q_{\min}}{r_{\min}} \right)^2 \frac{1}{x^2} \right] \right\}, \quad (\text{A.12})$$

wobei:

$$r_{\min} \equiv \sqrt{\frac{4e^4}{m^2 v_0^4} + q_{\min}^2 + \frac{2e^2}{m v_0^2}}.$$

Wie bei der e - i -Strahlung wird nach $\frac{\alpha c}{a v_0}$ entwickelt. Nach einer etwas langwierigen aber elementaren Integration erhält man:

$$S = \frac{222\pi^2}{45a} n \Phi_0 m c^3 \left[\left(\frac{E'_{\text{kin}}}{m c^2} \right)^{\frac{3}{2}} - \frac{392}{111\pi} \frac{\alpha}{a} \frac{E'_{\text{kin}}}{m c^2} + \dots \right] \quad (\text{A.13})$$

($E'_{\text{kin}} = m v_0^2/4$).

* In der entsprechenden Formel auf S. 207 des Buches von LANDAU und LIFSHITZ²⁴ steht an Stelle des Faktors $\frac{2}{15}$ der Faktor $\frac{4}{5}$.

W_{ee} wird nun gemäß $W_{ee} = \frac{n}{2} \langle \langle S \rangle_1 \rangle_2$ berechnet. Es gilt allgemein:

$$\langle \langle f(E'_{\text{kin}}) \rangle_1 \rangle_2 = \left(\frac{m/2}{2\pi\hbar T} \right)^{\frac{3}{2}} \int d^3v_0 e^{-\frac{m v_0^2}{4\hbar T}} f(E'_{\text{kin}}), \quad (\text{A.14})$$

so daß, wenn man noch $a = \frac{111\pi^2}{45C_F}$ setzt, um in nullter Näherung Übereinstimmung mit (30) zu erhalten, also gilt:

$$W_{ee}(\tau) = \frac{4C_F}{\sqrt{\pi}} n^2 \Phi_0 m c^3 \tau^{\frac{3}{2}} \left(1 - 0,00179 \frac{1}{\sqrt{\tau}} + \dots \right) \quad (\tau \ll 1). \quad (\text{A.15})$$

Das Vorzeichen der Korrektur ist negativ, da infolge der Abstoßung der mittlere Bahnabstand größer ist, als es bei geradliniger Bewegung der Fall wäre. Dem Betrage nach ist die Korrektur bei gegebener Temperatur nur etwa der dritte Teil derjenigen bei der e - i -Strahlung; bei $\hbar T = 10$ keV beträgt sie etwa $-1,3\%$.

Aus dem Institut für Angewandte Physik der Universität Hamburg

Wirkungsquerschnitt und Winkelverteilung der elastischen und unelastischen Elektronenstreuung in Aluminiumschichten *

Von

M. HORSTMANN und G. MEYER

Mit 6 Figuren im Text

(Eingegangen am 5. April 1961)

Absolute intensity measurements of the electrons scattered by a polycrystalline Aluminium foil were carried out in the energy range between 25 and 50 keV. The electrons scattered elastically were separated from those scattered inelastically by means of a retarding field. The intensities of the electrons having passed the foil unscattered and of those which were scattered elastically into the Debye-Scherrer-rings and into the continuous background can be interpreted by the assumption of reasonable thicknesses of the crystalline Aluminium and the amorphous Aluminium-Oxide. These values agree approximately with the thickness measured by light absorption. Additionally the probability of the inelastic scattering process can be deduced from these measurements. Investigations of the angular distribution were carried out in order to study the influence of the inelastic scattering on the shape of the primary beam, the rings and the continuous background. The results are discussed in detail. Some results are given in particular, concerning the increase of the half width of the rings due to inelastic scattering processes.

A. Einleitung

In der vorliegenden Arbeit werden Messungen der Elektronenstreuintensitäten polykristalliner Aluminiumfolien beschrieben. Das Ziel dieser Untersuchungen war es, einen Überblick über die Intensitäten der elastisch und unelastisch gestreuten Elektronen und ihre Winkelverteilung zu gewinnen.

Wenn in einer Folie verschiedene elastische und unelastische Streuprozesse möglich sind, überlagern sich die Winkelverteilungen der Einfach- und Mehrfachstreuprozesse zu einer Gesamtstreuverteilung, aus der die Beiträge der einzelnen Streuprozesse im allgemeinen nicht entnommen werden können.

In manchen Fällen besteht jedoch die gemessene Streuverteilung aus mehreren unterscheidbaren Streugruppen (z. B. Interferenzmaxima und kontinuierlichem Untergrund), die bestimmten Klassen von Streuprozessen zugeordnet werden können. Diese Möglichkeit besteht z. B. bei der Analyse von Streudiagrammen polykristalliner Aluminiumfolien

* Vorgetragen auf dem V. International Congress of the Union of Crystallography, Cambridge 1960.

und wird in der vorliegenden Arbeit ausgenutzt, um solche Debye-Scherrer-Diagramme zu interpretieren.

Nachdem im Abschnitt B die theoretischen Grundlagen für diese Interpretation dargestellt worden sind, wird im Abschnitt C auf absolute Intensitätsmessungen eingegangen. Die Messungen wurden mit einer Gegenfeldanordnung¹ ausgeführt, die sowohl die Möglichkeit einer sehr zuverlässigen Intensitätsmessung bietet als auch die Trennung von elastisch und unelastisch gestreuten Elektronen erlaubt*.

Es werden Meßergebnisse mitgeteilt, aus denen hervorgeht, wieviele der einfallenden Elektronen in die Primärstrahlrichtung, in die Interferenz-Ringe und in den kontinuierlichen Untergrund gestreut werden. Die Ergebnisse werden mit theoretischen Werten für die Streuwahrscheinlichkeiten verglichen.

Im Abschnitt D wird durch einen Vergleich gefilterter und ungefilterter Streudiagramme der Einfluß der unelastischen Streuung auf den Verlauf des kontinuierlichen Untergrundes und auf das Profil der Interferenzringe ermittelt.

B. Theoretische Vorbemerkungen

Zunächst soll der theoretische Zusammenhang zwischen den Wahrscheinlichkeiten der einzelnen Streuprozesse, die in einer polykristallinen Aluminiumfolie möglich sind, und den Intensitäten der beobachteten Streugruppen abgeleitet werden. Entsprechend den Überlegungen auf S. 27 und 32 hat man zur Interpretation der Experimente die folgenden Klassen von Streuprozessen zu unterscheiden:

- a) die elastische Streuung in Aluminium-Kristalliten,
- b) die elastische Streuung in amorphen Bestandteilen der Folie (z.B. Oxyd- oder anderen Fremdschichten),
- c) die unelastische Streuung in allen Teilen der Folie.

Andererseits können wir im Streudiagramm folgende Streugruppen voneinander unterscheiden:

- α) den Primärstrahl,
- β) die Interferenzringe,
- γ) den kontinuierlichen Untergrund.

Da außerdem mit der benutzten Gegenfeldanordnung¹ die Trennung von elastisch und unelastisch gestreuten Elektronen möglich ist*, können wir die genannten Streugruppen in gefilterten und ungefilterten Diagrammen betrachten.

* „Unelastisch gestreut“ nennen wir entsprechend dem Energieauflösungsvermögen der Meßanordnung diejenigen Elektronen, deren Energieverlust größer als etwa 2 eV ist. Streudiagramme, die durch Abtrennen aller unelastisch gestreuten Elektronen erhalten werden, bezeichnen wir als „gefiltert“.

¹ HORSTMANN, M., u. G. MEYER: Z. Physik **159**, 563 (1960).

Auf welche Weise lassen sich nun diese Streugruppen den genannten Klassen von Streuprozessen zuordnen?

Im *gefilterten* Streudiagramm rührt die Intensität des Primärstrahls von den Elektronen her, welche die Folie ungestreut durchdringen. Alle übrigen Elektronen des gefilterten Diagramms können in beliebiger Zahl die elastischen Streuprozesse (a) oder (b) erlitten haben. Die Einfachstreuung im kristallinen Folienteil führt zur Entstehung scharfer Interferenzringe, wenn die Kristallite nicht zu klein sind. Im Gegensatz dazu sind die im amorphen Teil der Folie elastisch gestreuten Elektronen (b) diffus über das Streudiagramm verteilt, bilden also einen Bestandteil des kontinuierlichen Untergrundes; dasselbe gilt auch für alle mehrfach elastisch gestreuten Elektronen, wenn mindestens einmal der Streuprozess (b) vorgekommen ist.

Auch der überwiegende Teil der Mehrfachstreuung (a) im kristallinen Folienteil würde zur Intensität des kontinuierlichen Untergrundes beitragen. Jedoch ist dieser Beitrag bei den von uns verwendeten Schichtdicken und Elektronenenergien zu vernachlässigen, wie im Abschnitt C gezeigt werden wird.

Eine entsprechende Interpretation der Streugruppen des *ungefilterten* Streudiagramms läßt sich nicht durchführen, wie sich im Abschnitt D durch Diskussion der Meßkurven ergeben wird. Wir berechnen daher im folgenden nur die absoluten, über alle Winkel integrierten Intensitäten des *gefilterten* Diagramms.

Werden die Wirkungsquerschnitte der Streufolie für die drei genannten Streuprozesse durch die mittleren Stoßzahlen ν_i , $i = a, b, c$, gekennzeichnet, welche mit der jeweils maßgebenden mittleren freien Weglänge A_i und der zugehörigen Schichtdicke d_i der Streufolie durch die Beziehung $\nu_i = d_i/A_i$ verknüpft sind, so sind die Wahrscheinlichkeiten für Mehrfachstreuung unter folgenden vereinfachenden Voraussetzungen durch die Poissonverteilung bestimmt: 1. Die Streuprozesse müssen unabhängig voneinander sein, so daß sich auch bei gemischter Mehrfachstreuung die mittleren freien Weglängen nicht ändern. 2. Die auftretenden Streuwinkel müssen klein sein, damit alle von den Elektronen durchlaufenen Wegstrecken mit den d_i identifiziert werden können. 3. Das Streuvermögen der Folie muß innerhalb des bestrahlten Bereichs vom Ort unabhängig sein. Die Folie darf also z.B. keine Löcher oder Dickenvariationen aufweisen; denn alle Elektronen sollen die gleichen streuenden Schichtdicken d_i durchlaufen. 4. Schließlich setzen wir voraus, daß aufeinanderfolgende Stöße an beliebig benachbarten Stellen der Folie geschehen können.

Die beiden letzten Voraussetzungen treffen für die elastischen Stöße (a) nicht in Strenge zu: Erstens variiert das Streuvermögen von Kristallit zu Kristallit, weil deren Orientierungen gegenüber dem Primärstrahl

sich unterscheiden². Die ortsunabhängige mittlere Stoßzahl ν_a , die nach Gl. (6) berechnet wird, ist aber höchstens (nämlich für eine einlagige Kristallitschicht) mit einem Fehler von der Größe $\frac{D/A_a}{1-D/A_a}$ (D = Kristallitgröße) behaftet. Zweitens sind nur solche elastischen Streuprozesse inkohärent, also voneinander unabhängig, die in verschiedenen Kristalliten stattfinden. Die Voraussetzung (4) ist aber bei unseren Experimentierbedingungen angenähert erfüllt, weil die Dicke der einzelnen Kristallite wesentlich kleiner als die mittlere freie Weglänge A_a ist (vgl. Tabelle, S. 29 und Abschnitt C).

Die Wahrscheinlichkeit $W(l, m, n)$ dafür, daß ein Elektron im kristallinen Folienteil l -mal elastisch, im amorphen Folienteil m -mal elastisch und insgesamt n -mal unelastisch gestreut worden ist, ergibt sich aus dem Produkt dreier Poisson-Verteilungen:

$$W(l, m, n) = \frac{\nu_a^l \cdot \nu_b^m \cdot \nu_c^n}{l! \cdot m! \cdot n!} \cdot e^{-(\nu_a + \nu_b + \nu_c)}. \quad (1)$$

Ein gefiltertes Streudiagramm enthält also insgesamt den Bruchteil

$$\sum_{l, m=0}^{\infty} W(l, m, 0) = e^{-\nu_0} \quad (2)$$

aller einfallenden Elektronen. Für die drei oben diskutierten Streugruppen ergeben sich aus Gl. (1) die folgenden Streuwahrscheinlichkeiten:

$$\alpha) \text{ Primärstrahl: } W_{Pr} = W(0, 0, 0) = e^{-(\nu_a + \nu_b + \nu_c)}, \quad (3)$$

$$\beta) \text{ Interferenzringe: } W_R = W(1, 0, 0) = \nu_a \cdot e^{-(\nu_a + \nu_b + \nu_c)}, \quad (4)$$

$$\gamma) \text{ Untergrund: } W_U = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} W(l, m, 0) = e^{-\nu_0} - W_{Pr} - W_R. \quad (5)$$

$(l, m) \neq (0, 0); (1, 0)$

Experimentell können die Wahrscheinlichkeiten W_{Pr} , W_R , W_U bestimmt werden, indem man einerseits vor der Folie die Intensität I_0 des auftreffenden Primärstrahls und andererseits im *gefilterten* Streudiagramm die Primärstrahlintensität I_{Pr} , die Gesamtintensität aller Ringe I_R und die gesamte Untergrundintensität I_U mißt. Man erhält dann die mittleren Stoßzahlen ν_i aus den folgenden Gleichungen:

$$\left. \begin{aligned} \nu_a &= \frac{I_R}{I_{Pr}} \\ \nu_a + \nu_b &= \ln \frac{I_{Pr} + I_R + I_U}{I_{Pr}} \\ \nu_a + \nu_b + \nu_c &= \ln \frac{I_0}{I_{Pr}} \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

² LEISEGANG, S.: Handbuch der Physik, Bd. XXXIII. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1956.

Hieraus ersieht man:

1. Die mittleren Stoßzahlen ν_a , ν_b , ν_c , können aus den Intensitäten der Streugruppen eines *gefilterten* Diagramms bestimmt werden.

2. Zur Bestimmung der elastischen Stoßzahlen ν_a und ν_b ist es notwendig, die entsprechenden Intensitäten mit der Intensität I_{P_r} des Primärstrahls hinter der Folie zu vergleichen. Es ist nicht richtig, die Intensität I_0 der einfallenden Elektronen zu benutzen, die sich von I_{P_r} um den Faktor $e^{-(\nu_a + \nu_b + \nu_c)}$ unterscheidet (hier etwa um einen Faktor 10).

3. Der Wert von I_c wird nur benötigt, wenn man die Summe aller mittleren Stoßzahlen bestimmen will.

Bei der praktischen Anwendung der Formeln (6) hat man zu bedenken, daß polykristalline Folien im allgemeinen nicht die vorausgesetzte Homogenität besitzen^{3,4}. Die gemessenen mittleren Stoßzahlen können daher nur als Anhaltswerte betrachtet werden.

C. Absolute Intensitätsmessungen

Die Untersuchungen wurden an einer etwa 400 Å dicken polykristallinen Aluminiumfolie durchgeführt. Die mittlere Kristallitgröße betrug 240 Å, wie sich aus der Ringbreite ergab. Über die Präparation der Folie wird in einer späteren Arbeit⁵ berichtet. Mit der Gegenfeldanordnung¹ wurden bei verschiedenen Energien der Primärelektronen gefilterte und ungefilterte Streudiagramme aufgenommen. Dazu wurde eine Spaltblende mit einem Öffnungswinkel $0,3 \cdot 10^{-3} \times 3 \cdot 10^{-3} \text{ rad}^2$ durch das Debye-Scherrer-Diagramm in radialer Richtung bis zu einem Streuwinkel von 0,1 rad bewegt und der in den Meßkäfig gelangende Strom I_k registriert. Die Spaltgeschwindigkeit war so bemessen, daß durch die endliche Einstellzeit der Registrieranordnung die Winkelverteilung nicht verfälscht wurde. Die beiden unteren Registrierkurven der Fig. 2 auf S. 31 sind ein Beispiel für die Radialschnitte durch ungefilterte bzw. gefilterte Debye-Scherrer-Diagramme. In diesen Diagrammen wurde der kontinuierliche Untergrund unterhalb der Reflexe graphisch interpoliert und durch Integration die Gesamtintensität der Ringe und des Untergrundes innerhalb des Streukegels von 0,1 rad Öffnungswinkel bestimmt. Ferner wurde vor und nach der Registrierung eines Debye-Scherrer-Diagramms die Intensität des Primärstrahls vor und hinter der Folie gemessen.

a) **Die Meßergebnisse.** Fig. 1 veranschaulicht die Ergebnisse absoluter Intensitätsmessungen bei den Elektronenenergien 25 und 48 keV. Aufgetragen sind die elastischen und unelastischen Streuintensitäten im

³ SJENITZER, F.: Diss. Utrecht 1948.

⁴ HABERSTROH, G.: Z. Physik **145**, 20 (1956).

⁵ HORSTMANN, M., u. G. MEYER: Acta Crystallogr. (im Druck).

Primärstrahl (I_{Pr}), in den Interferenzringen (I_R) und im kontinuierlichen Untergrund (I_U), jeweils bezogen auf die Gesamtintensität innerhalb des Streukegels von 0,1 rad Öffnungswinkel (d.h. Summe der sechs Anteile = 100%).

Sehr bemerkenswert ist der verschwindend geringe Intensitätsanteil der Ringe. Der Hauptteil der Streuintensität befindet sich im kontinuierlichen Untergrund sowohl des ungefilterten als auch des gefilterten

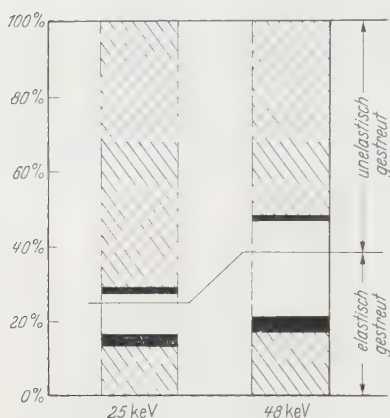


Fig. 1. Anteile der elastischen und unelastischen Streuintensität im Primärstrahl, in den Interferenzringen und im kontinuierlichen Untergrund an der Gesamtintensität innerhalb des Streukegels von 0,1 rad Öffnungswinkel. □ Primärstrahl; ■ Interferenzringe; ▨ kontinuierlicher Untergrund

Streudiagramms. Ferner fällt auf, daß unelastisch gestreute Elektronen viel häufiger auftreten als elastisch gestreute, und daß schließlich nur 8 bzw. 18% der Elektronen die Folie ungestreut durchdringen, d.h. im Primärstrahl des gefilterten Diagramms gefunden werden.

Die Abhängigkeit der verschiedenen Streuanteile von der Elektronenenergie ist verständlich, wenn man bedenkt, daß alle v_i mit wachsender Energie abnehmen. Deshalb nimmt mit wachsender Energie der ungestreute Anteil zu [vgl. Gl. (3)], und der gesamte Beitrag der unelastischen Streuung [$\sim (1 - e^{-v_e})$ nach Gl. (2)] geht zurück. Dagegen ändert sich der Intensitätsanteil der Interferenzringe kaum, weil nach Gl. (4) die

Abnahme der Stoßzahl v_a durch das Anwachsen des Schwächungsfaktors $e^{-(v_a + v_b + v_c)}$ zum Teil kompensiert wird*.

b) Bestimmung der mittleren Stoßzahlen v_i . Aus den gemessenen Intensitätswerten sollen jetzt die mittleren Stoßzahlen v_i nach Gl. (6) berechnet werden. Dabei ist jedoch zu bedenken, daß die Messungen nur bis zu einem maximalen Streuwinkel von 0,1 rad ausgeführt werden konnten. Aus diesem Grunde beträgt die gemessene Gesamtintensität aller Streugruppen bei den Elektronenenergien 25 und 48 keV nur 65 bzw. 90% der Intensität des einfallenden Primärstrahls. Es ist aber möglich, die Streuintensitäten im Winkelbereich außerhalb von 0,1 rad folgendermaßen abzuschätzen: Für die Stromdichteverteilung des kontinuierlichen Untergrundes wird ein Verlauf der Form

$$A / \left(B + \frac{\sin^2 \vartheta/2}{\lambda^2} \right)^2$$

* Die unelastischen Streuanteile in den einzelnen Streugruppen werden im Abschnitt D behandelt.

angenommen, wobei die Konstanten A und B durch stetige Anpassung dieser Funktion an den gemessenen Verlauf bestimmt werden.

Die Integration ergibt, daß bei der Messung bis $0,1$ rad nur etwa 50 bis 80 % der gesamten Untergrundintensität erfaßt wird.

Die Intensität aller Interferenzringe, die im Winkelbereich außerhalb von $0,1$ rad liegen, wird nach der kinematischen Theorie unter Berücksichtigung der Temperaturkorrektur (300°K) abgeschätzt. Danach gehen durch die Begrenzung des Winkelbereichs je nach Elektronenenergie zwischen 3 und 10 % der gesamten Ringintensität verloren.

Unter Benutzung dieser Abschätzungen erhält man die Gesamtintensitäten der Streugruppen des gefilterten Diagramms, und es können nach Gl. (6) die mittleren Stoßzahlen ν_i berechnet werden. Die Ergebnisse für verschiedene Elektronenenergien und verschiedene Folienstellen sind in der Tabelle auf S. 29 wiedergegeben.

Man erkennt, daß im kristallinen Folienteil praktisch keine elastische Mehrfachstreuung vorkommt ($\nu_a \ll 1$). Dagegen spielen Mehrfachstreuungsprozesse bei der elastischen Streuung in den amorphen Folienteilen und bei der unelastischen Streuung schon eine merkliche Rolle ($\nu_b \approx 1$ und $\nu_c > 1$).

Es ist zu bemerken, daß die Berücksichtigung einer diffusen elastischen Streuung nach Gl. (6) immer dann erforderlich ist, wenn sich die rechten Seiten der beiden ersten Gln. (6) um mehr als die Meßgenauigkeit unterscheiden. Dieser Fall liegt hier wegen der hohen beobachteten Untergrundintensität I_U vor, so daß zwangsläufig eine mittlere Stoßzahl ν_b eingeführt werden muß. Da ν_b wesentlich größer ist als ν_a , ist der Beitrag der kristallinen Mehrfachstreuung zur Intensität des kontinuierlichen Untergrundes zu vernachlässigen.

c) Diskussion der Ergebnisse. Um die gemessenen Werte ν_i mit den theoretisch berechneten Stoßzahlen d_i/λ_i vergleichen zu können, müssen sowohl die wirksamen Schichtdicken d_i als auch die mittleren freien Weglängen λ_i für die verschiedenen Streuprozesse bekannt sein.

Nun ist aber die Bestimmung der einzelnen Schichtdicken d_i nicht möglich, sondern es ist lediglich die aus der Durchlässigkeit für sichtbares Licht ermittelte Schichtdicke $d_{\text{Licht}} \approx 200 \text{ \AA}$ bekannt⁶. Weil dieser Wert nicht unmittelbar zu den Schichtdicken d_i in Beziehung gesetzt werden kann, soll zur theoretischen Deutung der Meßergebnisse folgender Weg eingeschlagen werden:

Zunächst werden die mittleren freien Weglängen für die verschiedenen Streuprozesse theoretisch berechnet. Durch Multiplikation mit den gemessenen mittleren Stoßzahlen ν_i erhält man für jeden Streuprozess

⁶ MAYER, H.: Physik dünner Schichten I. Stuttgart: Wissenschaftliche Verlagsgesellschaft 1955.

eine Schichtdicke \bar{d}_i , die man zum theoretischen Verständnis der gemessenen Intensitäten annehmen muß. Die bei verschiedenen Elektronenenergien und an verschiedenen Folienstellen erhaltenen Werte von \bar{d}_i werden miteinander verglichen.

a) Berechnung der mittleren freien Weglängen. Die mittlere freie Weglänge für die elastische Streuung im polykristallinen Aluminium. Die Intensität, die durch einen kubisch flächenzentrierten Kristalliten der Größe D im Mittel über alle Orientierungen in den Ring (\hbar) gestreut wird, beträgt nach der kinematischen Theorie:

$$I_{\hbar}^{\text{kin}} = I_0 \frac{\rho_{\hbar} A_{\hbar}^2}{2D|\hbar|}; \quad A_{\hbar} = \frac{2\pi m_0 e_0}{\hbar^2} V_{\hbar} \cdot D \cdot \lambda = 2,09 \cdot 10^{-2} \left[\frac{1}{\text{\AA}^2} \right] V_{\hbar} \cdot D \cdot \lambda. \quad (7)$$

Hierbei bedeuten: I_0 die Intensität der Elektronen, die auf den Kristalliten treffen, $|\hbar| = \frac{2 \sin \theta/2}{\lambda}$ der Betrag des reziproken Gittervektors, λ die Wellenlänge der Elektronen, ρ_{\hbar} die Flächenhäufigkeitszahl und V_{\hbar} der Fourier-Koeffizient des Kristallpotentials. Die Werte von V_{\hbar} werden aus dem Atomformfaktor $f_R(|\hbar|)$ von Aluminium für Röntgenstrahlen⁷ nach der Beziehung

$$V_{\hbar} = \frac{e_0}{4\pi^2 \epsilon_0} \frac{S(\hbar)}{a^3 |\hbar|^2} (Z - f_R) e^{-M(\hbar)} \quad (8)$$

berechnet, in welcher a die Gitterkonstante, $S(\hbar)$ den Strukturfaktor ($=4$), Z die Ordnungszahl und $e^{-M(\hbar)}$ die Debyesche Temperaturkorrektur (300°K) bedeuten.

Bei der vorliegenden Kristallitgröße von 240 \AA müssen wir allerdings dynamische Extinktionseffekte berücksichtigen. Wie in⁸ gezeigt wird, kann dies mit guter Genauigkeit in der von BLACKMAN⁹ aus der Zweistrahlnäherung der dynamischen Theorie berechneten Form

$$I_{\hbar}^{\text{dyn}} = I_{\hbar}^{\text{kin}} \frac{1}{A_{\hbar}} \int_0^{A_{\hbar}} J_0(2x) dx \quad (9)$$

geschehen. Hierin ist $J_0(x)$ die Bessel-Funktion nullter Ordnung. Durch Summation über alle Ringe erhält man das mittlere Streuvermögen des Kristalliten, woraus sich dann die mittlere freie Weglänge A_a nach der Beziehung

$$\frac{D}{A_a} = \frac{1}{I_0} \sum_{\hbar} I_{\hbar}^{\text{dyn}} \quad (10)$$

berechnen läßt, wenn $D \ll A_a$ ist (vgl. Tabelle).

Die mittlere freie Weglänge für die elastische Streuung im amorphen Folienteil. Im Abschnitt D wird gezeigt, daß der diffus streuende Teil der Folie zum größten Teil aus Al_2O_3 besteht. Zur angenäherten Berechnung der Streuwahrscheinlichkeit des Oxyds nehmen wir an, daß sich die Streuintensitäten der Einzelatome addieren. Diese Streuintensitäten werden durch Integration der Atomformfaktoren von Aluminium⁷ und Sauerstoff¹⁰ berechnet. Setzt man voraus, daß die Dichte der

⁷ TOMIIE, Y., u. C. H. STAM: Acta Crystallogr. **11**, 126 (1958).

⁸ HORSTMANN, M., u. G. MEYER: Naturwissenschaften **48**, 41 (1961).

⁹ BLACKMAN, M.: Proc. Roy. Soc. Lond. A **173**, 68 (1939).

¹⁰ BERGHUIS, J., I. M. HAANAPPEL, M. POTTERS, B. O. LOOPSTRA, C. H. MACGILVARY und A. L. VEENENDAAL: Acta Crystallogr. **8**, 478 (1955).

Oxydschicht ebenso groß ist wie die von makroskopischen Al_2O_3 -Schichten, so erhält man für die mittlere freie Weglänge die in der Tabelle angeführten Werte von Λ_b .

Die mittlere freie Weglänge für die unelastische Streuung. Streng genommen müßten hier alle unelastischen Streuprozesse im Aluminium und im Oxyd behandelt werden, die mit Energieverlusten von mehr als 2 eV (s. S. 22) verbunden sind. Nach BLACKSTOCK et al.¹¹ scheint sich jedoch die gesamte unelastische Streuwahrscheinlichkeit in Aluminium recht gut durch die Plasmatheorie beschreiben zu lassen. Daher kann für die mittlere freie Weglänge der von FERRELL¹² berechnete Wert

$$\Lambda_c = \frac{2a_H E}{\Delta E} \frac{1}{\ln \frac{\hbar k_c}{p} \frac{2E}{\Delta E}} \tag{11}$$

benutzt werden. Darin ist a_H der Bohrsche Wasserstoffradius, E und p Energie bzw. Impuls der einfallenden Elektronen, ΔE der Energieverlust und k_c die maximale Wellenzahl der Plasmaschwingung, die nach¹² den Wert $k_c = 1,2 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-1}$ hat.

Da entsprechende Berechnungen für Al_2O_3 nicht bekannt sind, verwenden wir versuchsweise dieselben Werte von Λ_c auch für die unelastische Streuung in der Oxydschicht, d.h. wir denken uns die Oxydschicht durch eine gleich stark unelastisch streuende Aluminiumschicht ersetzt.

Tabelle. Ergebnisse der absoluten Intensitätsmessungen bei verschiedenen Elektronenenergien E und an verschiedenen Folienstellen. v_a, v_b, v_c, v'_c sind die gemessenen mittleren Stoßzahlen für die elastischen Stöße im kristallinen Aluminium (a), bzw. in der Oxydschicht (b) und für die unelastische Streuung (c), wie sie sich nach Gl. (6) bzw. dem auf S. 36 genannten Verfahren ergeben. $\Lambda_i (i = a, b, c)$ sind die theoretisch berechneten mittleren freien Weglängen für die verschiedenen Streuprozesse (Kristallitgröße 240 Å). d_i sind die aus der Beziehung $d_i = v_i \Lambda_i$ berechneten Schichtdicken.

E [keV]	v_a	v_b	v_c	v'_c	Λ_a [Å]	Λ_b [Å]	Λ_c [Å]	d_a [Å]	d_b [Å]	d_c [Å]			
48	0,23	0,78	1,05	1,03	1800	340	860	405	265	890			
36	0,29	0,81	1,15	1,23	1550	260	660	450	210	760			
	0,31	0,96	1,30	1,26				480	250	850			
25	0,37	1,4	1,5	1,67	1350	185	490	490	260	710			
	0,32	1,3	1,9	1,79				425	240	930			
	0,29	1,1	1,8	1,62				385	200	880			
								Mittelwerte:					

β) Diskussion der Schichtdicken. Durch Multiplikation der gemessenen mittleren Stoßzahlen mit den berechneten mittleren freien Weglängen ergeben sich die in der Tabelle aufgeführten Schichtdicken, die für den jeweiligen Streuprozess maßgebend sind. Das sind also diejenigen Dicken einer Al-Schicht, einer Al_2O_3 -Schicht und einer unelastisch streuenden Al-Schicht, die man annehmen muß, um unter den benutzten

¹¹ BLACKSTOCK, A. W., R. H. RITCHIE und R. D. BIRKHOFF: Phys. Rev. **100**, 1078 (1955).

¹² FERRELL, R. A.: Phys. Rev. **99**, 647 (A) (1955).

Voraussetzungen die beobachteten Intensitäten der Streugruppen a, b, c im gefilterten Debye-Scherrer-Diagramm erklären zu können.

Diese Voraussetzungen betreffen erstens die Anwendbarkeit der Poisson-Verteilung [Gl. (1)] sowie zweitens die Gültigkeit der obigen Berechnungen der mittleren freien Weglängen Λ_i . Schließlich ist drittens zu bemerken, daß zur Bestimmung der mittleren Stoßzahlen ν_i nach Gl. (6) eine Abschätzung der Streuintensität im Winkelbereich außerhalb 0,1 rad erforderlich war.

Die erhaltenen Werte für die Dicke der einzelnen Schichtteile streuen nur um $\pm 10\%$ um den jeweiligen Mittelwert, obwohl die Messungen bei verschiedenen Elektronenenergien und an verschiedenen Stellen der Folie ausgeführt wurden.

Da also die Schichtdicken d_i nicht von der Elektronenenergie abhängen, können wir den Schluß ziehen, daß die Energieabhängigkeit der gemessenen mittleren Stoßzahlen ν_i durch die Energieabhängigkeit der theoretisch berechneten mittleren freien Weglängen richtig wiedergegeben wird*. Insbesondere wird dadurch die Benutzung der dynamischen Zweistrahl-näherung bei der Berechnung der mittleren freien Weglänge Λ_a gerechtfertigt, denn die nach der kinematischen Theorie berechnete mittlere freie Weglänge besitzt eine stärkere Abhängigkeit von der Elektronenenergie als mit den Meßergebnissen verträglich ist. Auch die Größenordnung der erhaltenen Werte d_i entspricht etwa den Erwartungen. Die Dicke d_a des kristallinen Folienteils ist zwar um etwa einen Faktor 2 größer als die Schichtdicke $d_{\text{Licht}} \approx 200 \text{ \AA}$. Es ist jedoch bekannt, daß verschiedene Methoden zur Schichtdickenbestimmung ähnliche Diskrepanzen ergeben können⁶.

Die Dicke der Folie einschließlich Oxydschicht setzt sich additiv aus d_a und d_b zusammen. Es sollte also $d_a + d_b \approx d_c$ sein. Das ist auch angenähert der Fall. Die Unterschiede zwischen $d_a + d_b$ und d_c können auf folgende Weise erklärt werden: Erstens ist bei der Berechnung der unelastischen Streuintensität die Ersetzung der Oxydschicht durch eine gleich stark unelastisch streuende Aluminiumschicht nicht streng richtig und zweitens erfaßt die Plasmatheorie nicht alle im Aluminium möglichen unelastischen Streuprozesse.

Nach diesen Ergebnissen erlaubt also das dargestellte Auswerteverfahren, die Intensitäten der verschiedenen Streugruppen eines Debye-Scherrer-Diagramms und ihre Energieabhängigkeit durch Annahme homogener Schichten von geeigneter Dicke quantitativ zu

* Aus einer Messung von I_0/I_{Pr} bei 11 keV ergibt sich nach Gl. (6) für $\nu_a + \nu_b + \nu_c$ der Wert 6,0. Andererseits erhält man aus den theoretisch berechneten mittleren freien Weglängen Λ_i und unter Benutzung der in der Tabelle angegebenen mittleren Schichtdicken d_i den Wert $\nu_a + \nu_b + \nu_c = 6,5 \pm 0,6$, in guter Übereinstimmung mit dem Ergebnis der Messung.

erklären. Die erhaltenen Schichtdicken sind von vernünftiger Größe. Eine genauere Kontrolle der Ergebnisse ist jedoch nicht möglich, weil keine anderweitige zuverlässige Information über den Folienaufbau vorhanden ist.

D. Die Winkelverteilung gefilterter und ungefilterter Streudiagramme

Als Ergänzung zu der vorangehenden Betrachtung über die absoluten Gesamtintensitäten der Streugruppen soll jetzt die Winkelverteilung der Stromdichte in gefilterten und ungefilterten Debye-Scherrer-Dia-

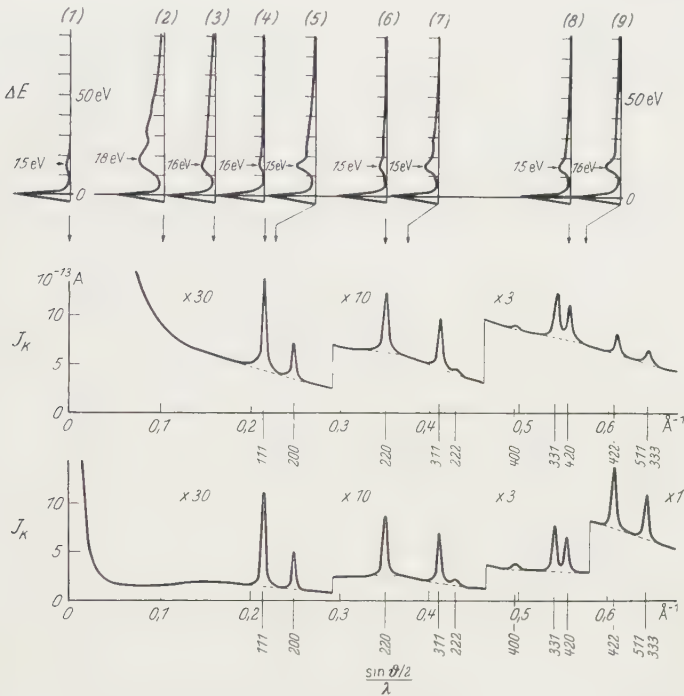


Fig. 2. Mitte und unten: Radialschnitte durch ein ungefiltertes bzw. gefiltertes Debye-Scherrer-Diagramm von Aluminium. Kristallgröße 240 Å, Elektronenenergie 48 keV (J_K = Strom im Meßkäfig; Meßblende: $0,3 \cdot 10^{-3} \times 3 \cdot 10^{-3}$ rad²). Oben: Zu den angegebenen Streurichtungen gehörende Energiespektren, normiert auf gleiche Höhe des 0 eV-Maximums

grammen diskutiert werden. Eine Gegenüberstellung von Registrierkurven solcher Diagramme zeigt Fig. 2. Man erkennt deutlich den größeren Kontrast der Interferenzringe im gefilterten Diagramm. Im ungefilterten Diagramm fällt die starke Untergrundintensität in der Umgebung des Primärstrahls auf, die langsam nach größeren Streuwinkeln hin abfällt.

Im folgenden wird der kontinuierliche Untergrund des gefilterten Streudiagramms diskutiert und auf die Unterschiede zwischen gefilterten und ungefilterten Streudiagrammen eingegangen.

a) Der kontinuierliche Untergrund des gefilterten Streudiagramms.

Aus der Diskussion der absoluten Streuintensitäten (s. S. 27) ging hervor, daß zur Erklärung des intensiven kontinuierlichen Untergrundes im gefilterten Diagramm eine diffuse elastische Streuung angenommen

werden muß. Im folgenden soll versucht werden, diesen Streuprozeß zu identifizieren.

Fig. 3 gibt den Verlauf des kontinuierlichen Untergrundes bei drei verschiedenen Elektronenenergien wieder. Die Kurven sind so normiert, daß ihr Verlauf gut verglichen werden kann. Auffällig sind die breiten Maxima, deren Lage gut mit denen des amorphen Al_2O_3 übereinstimmt¹³, wie die Pfeile in der Fig. 3 andeuten. Wir schließen daraus, daß der überwiegende Teil des kontinuierlichen Untergrundes herrührt von der elastischen Streuung in einer Oxydschicht, mit der die Aluminium-Folie bedeckt ist. Auf Grund des Präparationsverfahrens⁵ ist eine solche Oxydschicht sicher vorhanden.

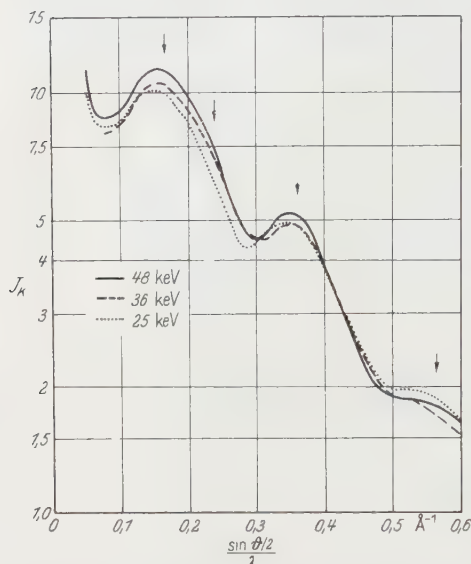


Fig. 3. Verlauf der Stromdichte des kontinuierlichen Untergrundes im gefilterten Streudiagramm, normiert auf gleiche Gesamtintensität im Winkelbereich $0,05 \leq \frac{\sin \theta/2}{\lambda} \leq 0,6 \text{ \AA}^{-1}$. Die Pfeile geben die Lage der Maxima in der Streuverteilung von amorphen Al_2O_3 an¹³

Diese Annahme wird durch den Verlauf der Energiespektren (Fig. 2) bestätigt. Nach ¹⁴ ist nämlich die Energieverteilung der in dünnen Al_2O_3 -Schichten unelastisch gestreuten Elektronen (im Gegensatz zur unelastischen Elektronenstreuung in dünnen Aluminiumschichten) sehr breit und besitzt ein Maximum bei etwa 22 eV. Damit ist es verständlich, daß die Energiespektren der Fig. 2 neben den scharfen Maxima, die dem charakteristischen Energieverlust von Aluminium entsprechen, auch einen kontinuierlichen Anteil enthalten, der vom Al_2O_3 herrührt.

Aus Fig. 3 ist ersichtlich, daß mit abnehmender Elektronenenergie die Maxima und Minima des kontinuierlichen Untergrundes etwas

¹³ Siehe z.B. KERR, I. S.: Acta Crystallogr. **9**, 879 (1956).

¹⁴ POWELL, C. J., and J. B. SWAN: Phys. Rev. **118**, 640 (1960).

mehr ausgeglichen werden, und daß die Tendenz zu einem flacheren Verlauf besteht. Diese Effekte sind durch einen zunehmenden Einfluß der elastischen Mehrfachstreuung in der Oxydschicht zu verstehen. In Übereinstimmung damit variiert ν_b zwischen 0,8 und 1,3 (s. Tabelle).

Es seien noch kurz folgende möglichen Entstehungsursachen des kontinuierlichen Untergrundes diskutiert: Ein Leerversuch ergab, daß die Elektronenstreuung an den Blendenrändern und an den Stegen des Folienträgernetzes unmeßbar schwach ist. Ebenso kann ein Einfluß der Objektveränderung durch Elektronenbestrahlung (Verschmutzung, Entstehung von Gitterfehlern¹⁵) auf den kontinuierlichen Untergrund ausgeschlossen werden, weil sich dieser innerhalb der Meßzeit von einigen Stunden bei Anwendung einer Objektabschirmung¹ kaum ändert.

Die Intensität der an thermischen Gitterschwingungen gestreuten Elektronen ist nach theoretischen Überlegungen erheblich kleiner als die Gesamtintensität der Interferenzringe und kann somit ebenfalls vernachlässigt werden. Ähnliches sollte auch für die Streuung an Gitterfehlern und an regellos bzw. in feinkristallinem Zustand angeordneten Aluminium-Atomen gelten^{16, 17}, da deren Zahl sicherlich wesentlich kleiner ist als die Zahl der Kristallatome; denn die Folie war vor Beginn der Messung 20 min lang bei etwa 400° C getempert worden.

Schließlich kann im hier vorliegenden Fall auch der Anteil der kristallinen Mehrfachstreuung am kontinuierlichen Untergrund^{3, 17} vernachlässigt werden, weil nach den Ergebnissen des Abschnitts C die mittlere Stoßzahl ν_a wesentlich kleiner als ν_b ist.

Aus diesen Betrachtungen geht hervor, daß die quantitative Interpretation des kontinuierlichen Untergrundes allein durch die diffuse elastische Streuung in der Al_2O_3 -Schicht eine recht gute Näherung darstellt.

b) Der Primärstrahl und der kontinuierliche Untergrund. Durch einen Vergleich des ungefilterten und des gefilterten Streudiagramms sowie durch Diskussion der Energiespektren (Fig. 2) soll der Einfluß der unelastischen Streuung auf die Winkelverteilung der Streuintensität ermittelt werden.

Wenn man von den Interferenzringen absieht, bilden im gefilterten Diagramm der scharfe und sehr intensive Primärstrahl und der um einen Faktor 10^3 schwächere und nach größeren Streuwinkeln hin flach abfallende kontinuierliche Untergrund zwei deutlich verschiedene Streugruppen (vgl. Fig. 4a). Das Profil des Primärstrahls im gefilterten Streudiagramm wird allein durch die apparativen Parameter, Divergenz des einfallenden Primärstrahls und Größe der Meßblende, bestimmt. Auch im ungefilterten Diagramm hebt sich der Primärstrahl deutlich vom kontinuierlichen Untergrund ab. Während allerdings der intensitätsschwächere Teil des Profils durch die unelastische Streuung gegenüber dem gefilterten Diagramm stark verbreitert ist, beträgt die Vergrößerung der *Halbwertsbreite* des Primärstrahls nur wenige Prozent.

¹⁵ TOL, T.: Diss. Utrecht 1940.

¹⁶ LEONHARD, F.: Z. Naturforsch. **9a**, 727, 1019 (1954).

¹⁷ LENNANDER, S.: Ark. Fysik **8**, 551 (1954).

Da das Energiespektrum Nr. 2 in Fig. 2 im Vergleich zu allen anderen Spektren einen größeren Anteil solcher Elektronen enthält, deren

Energieverlust ein Mehrfaches des charakteristischen Energieverlustes von 15 eV beträgt, können wir schließen, daß an der Verbreiterung des Primärstrahls die unelastische Mehrfachstreuung merklich beteiligt ist.

Übrigens zeigt dieses Energiespektrum im Gegensatz zu den anderen einen häufigsten Energieverlust von 18 eV. Dieser Befund ist auf Grund der Dispersionsrelation der Plasmatheorie zu verstehen, weil die in die Beobachtungsrichtung gestreuten Elektronen ihre Richtungsänderung bei einem unelastischen Stoß erfahren und dabei einen größeren Impuls an das Plasma abgeben als die in Vorwärtsrichtung gestreuten^{18,19}.

Vergleicht man in Fig. 4a bei größeren Streuwinkeln den kontinuierlichen Untergrund des ungefilterten mit dem des gefilterten, so erkennt man, daß deren Intensitäten etwa proportional zueinander sind. Außerdem haben die Energie-

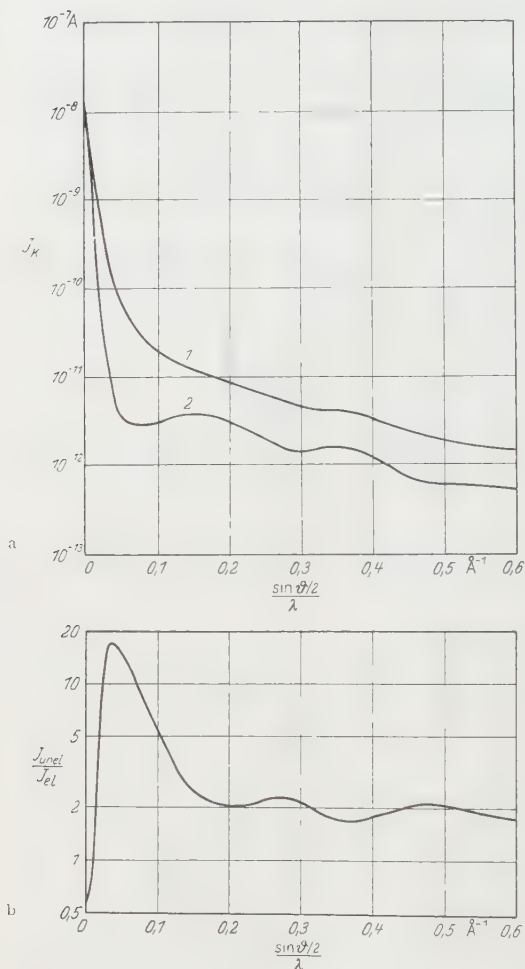


Fig. 4. a Verlauf des kontinuierlichen Untergrundes im ungefilterten (1) und gefilterten (2) Streudiagramm bei 48 keV. b Winkelabhängigkeit des Quotienten aus unelastischer und elastischer Streuintensität des kontinuierlichen Untergrundes bei 48 keV

spektren Nr. 5, 7, 9 in Fig. 2 nahezu die gleiche Form. Dieser Befund läßt sich dadurch erklären, daß der kontinuierliche Untergrund

¹⁸ WATANABE, H.: J. Phys. Soc. Japan **11**, 112 (1956).

¹⁹ MEYER, G.: Z. Physik **148**, 61 (1957).

des ungefilterten Diagramms durch gemischte Mehrfachstreuung* zustandekommt, und daß der Beitrag der ausschließlich unelastisch gestreuten Elektronen sehr gering ist. Da nämlich die unelastische Streuverteilung sehr schmal ist, wird der Verlauf des ungefilterten Untergrundes ebenso wie der des gefilterten im wesentlichen durch die diffuse elastische Streuung bestimmt. Der Einfluß der unelastischen Streuung besteht lediglich darin, daß die breiten Maxima und Minima etwas ausgeglichen werden**.

Um die Unterschiede zwischen dem gefilterten Streudiagramm, das nur die ausschließlich elastisch gestreuten Elektronen enthält [vgl. Gl. (2)], und dem ungefilterten Streudiagramm quantitativ zu diskutieren, bilden wir den Quotienten $I_{\text{unelast}}/I_{\text{elast}}$ der aus Fig. 4a entnommenen unelastischen und elastischen Streuintensität. Man erkennt in Fig. 4b, daß dieser Quotient in der Umgebung des Primärstrahls $\left(\frac{\sin \vartheta/2}{\lambda} < 0,15 \text{ \AA}^{-1}\right)$ sehr stark vom Streuwinkel abhängt, während er im äußeren Winkelbereich $\left(\frac{\sin \vartheta/2}{\lambda} > 0,15 \text{ \AA}^{-1}\right)$ nahezu konstant ist.

Dieses Verhalten läßt sich folgendermaßen erklären: Unter den auf S. 23 für die statistische Behandlung der Mehrfachstreuung gemachten Voraussetzungen unterscheidet sich die gefilterte Streuverteilung $I_{\text{elast}}(\vartheta)$ (Kurve 2 in Fig. 4a) um den Faktor $e^{-\nu_0}$ von derjenigen elastischen Streuverteilung, die sich bei verschwindender unelastischer Streuwahrscheinlichkeit ergeben würde. Wenn man die Streurichtungen durch die Vektoren $\vec{\vartheta}$ kennzeichnet, erhält man daher die Winkelverteilung der unelastisch gestreuten Elektronen $I_{\text{unelast}}(\vartheta)$ aus dem Faltungsintegral

$$I_{\text{unelast}}(\vartheta) = e^{\nu_0} \int I_{\text{elast}}(|\vec{\vartheta} - \vec{\vartheta}'|) \cdot f_u(|\vec{\vartheta}'|) d\Omega_{\vec{\vartheta}'}. \quad (12)$$

$f_u(\vartheta')$ ist darin die auf $1 - e^{-\nu_0}$ normierte Winkelverteilung der durch die mittlere Stoßzahl ν_c charakterisierten unelastischen Streuung. Zur weiteren Diskussion machen wir Gebrauch von der oben erwähnten Tatsache, daß $f_u(\vartheta')$ nur in einem kleinen Winkelbereich merklich von null verschieden ist. Daher wird die unelastische Streuintensität in der Beobachtungsrichtung $\vec{\vartheta}$ nur durch die Größe von $I_{\text{elast}}(|\vec{\vartheta} - \vec{\vartheta}'|)$ in einer kleinen Umgebung von $\vec{\vartheta}$ bestimmt. Nach Fig. 4a besitzt die diffuse elastische Streuverteilung im äußeren Winkelbereich $\left(\frac{\sin \vartheta/2}{\lambda} > 0,15 \text{ \AA}^{-1}\right)$

* Unter gemischter Mehrfachstreuung ist hier eine Kombination der elastischen Streuung im amorphen Folienteil und der unelastischen Streuung zu verstehen.

** Es zeigt sich, daß auch hinsichtlich der breiten Interferenzmaxima amorpher Substanzen die gefilterten Streudiagramme kontrastreicher sind als die ungefilterten, wodurch die Untersuchung amorpher Substanzen erleichtert wird.

eine so schwache Winkelabhängigkeit, daß man angenähert schreiben kann:

$$I_{\text{unelast}}(\vartheta) = e^{v_c} I_{\text{elast}}(\vartheta) \cdot \int f_u(\vartheta') d\Omega_{\vartheta'}. \quad (13)$$

Es sollte sich also für den Quotienten $I_{\text{unelast}}/I_{\text{elast}}$ der Wert $e^{v_c} - 1$ ergeben. Damit kann aus dem Mittelwert des Verhältnisses $I_{\text{unelast}}/I_{\text{elast}}$ im äußeren Winkelbereich ein zweiter Wert für die mittlere Stoßzahl v_c ermittelt werden. Diese Werte v'_c sind ebenfalls in der Tabelle aufgeführt und stimmen sehr gut mit v_c überein.

Eine quantitative Interpretation des Quotienten $I_{\text{unelast}}/I_{\text{elast}}$ im Winkelbereich $\frac{\sin \vartheta}{\lambda} < 0,15 \text{ \AA}^{-1}$ unter Benutzung des Faltungsintegrals (12) ist nicht möglich, weil der Verlauf der Funktion $f_u(\vartheta)$ nicht bekannt ist. Es ist aber ohne weiteres verständlich, daß in Richtung $\vartheta \approx 0$ das Verhältnis $I_{\text{unelast}}/I_{\text{elast}}$ kleiner ist als $e^{v_c} - 1$ (vgl. Fig. 4b und Energiespektrum Nr. 1 in Fig. 2); denn eine nicht zu große Meßblende in der Richtung $\vartheta \approx 0$ erfaßt zwar alle ungestreuten aber nur einen Teil der unelastisch gestreuten Primärelektronen. In der Umgebung des Primärstrahls dagegen (z.B. bei $\frac{\sin \vartheta/2}{\lambda} = 0,05 \text{ \AA}^{-1}$) werden praktisch keine ungestreuten Elektronen erfaßt, so daß das Verhältnis $I_{\text{unelast}}/I_{\text{elast}}$ den Wert $e^{v_c} - 1$ erheblich übersteigt.

c) Die Interferenzringe. In bezug auf den unelastischen Streuanteil liegen die Verhältnisse in den Interferenzringen ähnlich wie im Primär-

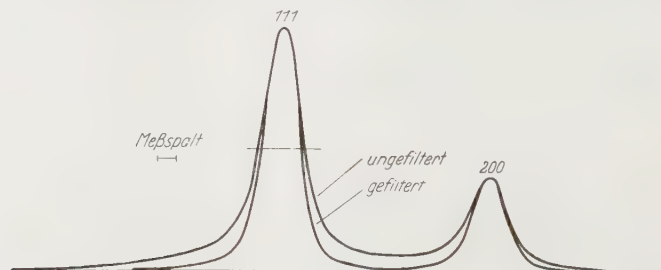


Fig. 5. Vom kontinuierlichen Untergrund abgetrennte Profile des 111- und 200-Ringes im gefilterten und im ungefilterten Debye-Scherrer-Diagramm von Aluminium (Kristallitgröße 130 Å). Die Kurven sind auf gleiche Maximalintensität des 111-Ringes bezogen

strahl. Einerseits weisen die mit einer relativ kleinen Meßblende (s. Fig. 5) in den Bragg'schen Winkeln gemessenen Energiespektren (Nr. 4, 6, 8 in Fig. 2) einen ähnlich geringen Anteil unelastisch gestreuter Elektronen auf wie das Energiespektrum Nr. 1. Andererseits sind die Ringprofile durch die unelastische Streuung verbreitert.

Im folgenden werden diese Ringverbreiterungen und der gesamte unelastische Streuanteil in den verschiedenen Interferenzringen behandelt.

α) *Der gesamte unelastische Streuanteil.* Um den Anteil der unelastisch gestreuten Elektronen an der Gesamtintensität eines Interferenzringes ($I_{\text{unelast}}/I_{\text{elast}}$) zu ermitteln, müßte über das wahre Ringprofil integriert werden. Diese Integration ist in praxi jedoch nicht möglich, weil besonders im ungefilterten Streudiagramm der wahre Verlauf des kontinuierlichen Untergrundes nicht mit Sicherheit bestimmt werden kann, und weil außerdem einander überlappende Interferenzringe nicht eindeutig separiert werden können (vgl. Abschnitt β und Fig. 5).

Üblicherweise geschieht die Abtrennung der Interferenzringe vom kontinuierlichen Untergrund dadurch, daß der Verlauf des Untergrundes unterhalb der Ringe durch graphische Interpolation festgelegt wird. Die Reproduzierbarkeit dieses Abtrennverfahrens hängt etwas von der Elektronenenergie und der Kristallitgröße ab. Die Streuung der so bestimmten Werte für die integralen Ringintensitäten beträgt im Mittel im gefilterten Diagramm etwa $\pm 5\%$, im ungefilterten Diagramm dagegen etwa $\pm 15\%$.

Bei Anwendung dieses Abtrennverfahrens ergibt sich aus unseren Messungen, daß die relativen Ringintensitäten im gefilterten und im ungefilterten Streudiagramm innerhalb $\pm 15\%$ übereinstimmen. In jedem Interferenzring ist also praktisch der gleiche Anteil unelastisch gestreuter Elektronen enthalten, und zwar beträgt das Verhältnis $I_{\text{unelast}}/I_{\text{elast}}$ bei der benutzten polykristallinen Aluminiumfolie (Kristallitgröße $D = 240 \text{ \AA}$) bei 25 keV 0,42 und bei 48 keV 0,25.

Auf Grund der Inkohärenz der Streuprozesse (s. Abschn. B) würde man dagegen für das Verhältnis $I_{\text{unelast}}/I_{\text{elast}}$ den Wert $e^{2\mu} - 1$ erwarten, d.h. nach der Tabelle bei 25 keV 4,8 und bei 48 keV 1,9.

Die starke Diskrepanz zwischen den gemessenen und den berechneten Werten muß wohl auf systematische Fehler bei der Abtrennung der Interferenzringe im ungefilterten Diagramm zurückgeführt werden. Diese nicht genau bestimmbar systematischen Fehler bestehen darin, daß bei der graphischen Interpolation ein relativ großer Betrag des unelastischen Streuanteils, der die Basis des ungefilterten Interferenzringes bildet (vgl. Fig. 5), dem kontinuierlichen Untergrund zugerechnet und nur der weniger verbreiterte obere Teil des Ringprofils abgetrennt wird. Die dadurch bedingten relativen Fehler der Untergrundintensität sind nur gering, da die Gesamtintensität der Interferenzringe im Vergleich zu der des kontinuierlichen Untergrundes schwach ist (vgl. Fig. 1). Die systematischen Fehler beim Abtrennen der Interferenzringe im gefilterten Diagramm sind bedeutend kleiner⁵.

Für den folgenden Abschnitt β ist die Bemerkung von Bedeutung, daß die Abtrennfehler keine große Unsicherheit bei der Bestimmung der Halbwertsbreiten der Interferenzringe bedingen.

Die oben erwähnte Übereinstimmung der relativen Ringintensitäten im gefilterten und im ungefilterten Streudiagramm zeigt, daß die systematischen Abtrennfehler für alle Ringe etwa gleich sind, was durch eine Ähnlichkeit der Ringprofile im ungefilterten Streudiagramm zu erklären wäre.

β) *Die Ringverbreiterung durch unelastische Streuung.* Wie aus der Gegenüberstellung der Interferenzringe des gefilterten und des ungefilterten Streudiagramms (vgl. Fig. 5) hervorgeht, werden die Ringprofile durch die unelastische Streuung verbreitert: Die Flanken der Ringe im ungefilterten Diagramm sind abgeflacht und die Ringbasen sehr ausgedehnt.

Wir haben die Halbwertsbreiten β der Interferenzringe des gefilterten und des ungefilterten Streudiagramms miteinander verglichen. Dabei

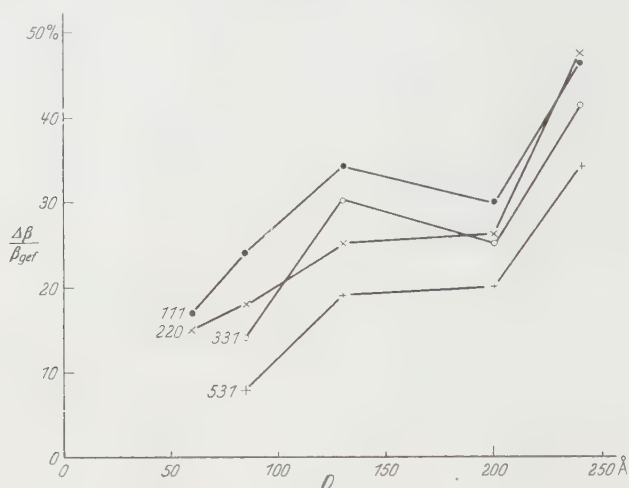


Fig. 6. Relative Unterschiede $\frac{\beta_{\text{ungef}} - \beta_{\text{gef}}}{\beta_{\text{gef}}} = \frac{\Delta\beta}{\beta_{\text{gef}}}$ der Halbwertsbreiten verschiedener Interferenzringe im ungefilterten und gefilterten Streudiagramm bei mehreren Kristallitgrößen D . Der absolute Fehler beträgt im Mittel etwa $\pm 5\%$

muß die Verbreiterung der Ringe durch den Meßspalt berücksichtigt werden. Da die Ringbreite $\beta_{\text{wahr}} \sim \lambda/D$ bei abnehmender Elektronenenergie im Vergleich zum Öffnungswinkel des Meßspaltes zunimmt, kann man durch Extrapolation der gemessenen Werte $\beta_{\text{exp}}/\lambda$ auf die Energie $E = 0$ den Einfluß des Spaltes eliminieren (vgl. auch ⁵).

Aus den so reduzierten Halbwertsbreiten der Interferenzringe des ungefilterten (β_{ungef}) und des gefilterten Diagramms (β_{gef}) ergibt sich die relative Ringverbreiterung, die in Fig. 6 für verschiedene Ringe in Abhängigkeit von der Kristallitgröße⁵ aufgetragen ist. Man sieht, daß die Verbreiterung mit wachsender Kristallitgröße zunimmt. Das ist anschaulich leicht zu verstehen; denn bei konstantem unelastischem Streuanteil ist die relative Ringverbreiterung um so stärker, je schmäler das elastische Ringprofil ist. (Die systematischen Unterschiede in den Ergebnissen für die verschiedenen Ringe sind darauf zurückzuführen, daß die Halbwertsbreite mit wachsendem Streuwinkel zunimmt⁵.) Man

sollte erwarten, daß die relative Ringverbreiterung auch von der Elektronenenergie abhängt, weil der Anteil der unelastisch gestreuten Elektronen in den Interferenzringen mit wachsender Energie abnimmt (s. oben). Jedoch ist hier die Meßgenauigkeit zu gering, um diesen Effekt beobachten zu können.

Fig. 6 zeigt, daß bei Kristallitgrößen von über 100 \AA , wie sie in polykristallinen Folien häufig vorliegen, die Verbreiterung der Interferenzringe durch die unelastische Streuung unter Umständen über 20% betragen kann. Eine zuverlässige Untersuchung der Ringprofile ist daher nur in gefilterten Streudiagrammen möglich.

Die Verfasser danken Herrn Professor Dr. H. RAETHER herzlich für die Anregung zu dieser Arbeit und für sein förderndes Interesse. Die Deutsche Forschungsgemeinschaft unterstützte die Arbeit in dankenswerter Weise durch Bereitstellung finanzieller Mittel und verschiedener Geräte.

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Universität Bonn

Die kathodischen Entladungsgebiete der nichtstationären Glimmentladung

Von

KARL GERHARD MÜLLER

Mit 6 Figuren im Text

(Eingegangen am 3. Mai 1961)

The basic equations of the cathode fall region are linearized for small perturbations from a stationary state. The calculation is based on a one dimensional model. The linearized system of equations is solved by series expansion in space and time. As a result, a linear differential equation for the discharge current and the cathode fall, the differential characteristic is obtained. The inclusion of the first main terms allows a transformation of this differential characteristic into a differential equation of an electric circuit, consisting of an ohmic resistance R , a self inductance L and a capacitance C . The terms R , L , C are given as functions of discharge parameters, which may be determined experimentally or theoretically for the stationary glow discharge. Two different cases are considered. In the first case the influence of the ionic transient time through the cathode fall region is investigated. The second case takes into account the diffusion of metastable atoms from the glow to the cathode. The results may be applied in stability considerations, in the investigation of the production of oscillations within the cathode fall region and in the description of a glow discharge produced by an external direct voltage with a small superimposed alternating voltage.

Einleitung

Mit dem Studium der verschiedenen Eigenschaften eines Gasentladungsplasmas an einfachen Entladungsformen wurde auch die Untersuchung der Glimmentladung verstärkt.

An experimentellen Untersuchungen über die stationäre Glimmentladung liegt ein umfangreiches Material vor (siehe z.B. ¹). Die von verschiedenen Autoren ^{2,3,4} entwickelte Theorie der kathodischen Gebiete der stationären Glimmentladung wurde mit der fortschreitenden Kenntnis der Elementarprozesse weiter ausgebaut. So berücksichtigt NEU ⁵ die Spannungsabhängigkeit der kathodischen Elektronenauslösung und erfaßt die Stoßionisation der Elektronen durch eine empirische Näherungsformel. Die besonderen Verhältnisse der Ionenbewegung in den

¹ FRANCIS, G.: Handbuch der Physik, Bd. XXII. Berlin 1956.

² WEIZEL, W., R. ROMPE u. M. SCHÖN: Z. Physik **112**, 339; **113**, 87, 730 (1939).

³ SCHERZER, O.: Arch. Elektrotechn. **33**, 207 (1939).

⁴ LITTLE, P.F., and A. V. ENGEL: Proc. Roy. Soc. Lond. A **224**, 209 (1954).

⁵ NEU, H.: Z. Physik **154**, 423; **155**, 77 (1959).

extremen Fallraumfeldern wurden von BADAREU, POPESCU und JOVA⁶ diskutiert. Wie ECKER und MÜLLER⁷ ausführen, sind die prinzipiellen Mechanismen des Kathodengebietes verstanden, ihre exakte Formulierung und numerische Auswertung bereiten jedoch noch Schwierigkeiten. Der Hauptgrund dazu liegt in der noch ungenügenden Kenntnis der einzelnen Elementarprozesse.

Die entsprechende Situation bei der nichtstationären Glimmentladung läßt sich folgendermaßen skizzieren. Wir lassen dabei die nichtstationären Effekte der positiven Säule und des Anodengebietes außer acht. Ein wichtiges Ziel der experimentellen Arbeiten liegt in dem Studium der Glimmentladung als Element eines Schaltkreises. Hierzu gehören die Messung der Impedanz⁸⁻¹⁴ und die Untersuchung von Glimmentladungsintermittenzen¹⁵⁻²⁰. Aus den bei diesen Experimenten ermittelten Relaxationszeiten leitete man die Laufzeit der Ionen im Fallraum¹⁰ und die Aufbau- und Abklingzeiten der Raumladung^{18,19} her. Im Zusammenhang mit diesen Intermittenzen tauchte die Frage der Stationarität einer Glimmentladung auf. Geeignete Ersatzschaltungen wurden zur Beschreibung der Entladung vorgeschlagen.

Eine weitere wichtige Gruppe von experimentellen Arbeiten, auf die wir hier nicht weiter eingehen wollen, untersucht an gepulsten Entladungen Aufbau- und Abklingzeiten.

Die bisher vorliegenden theoretischen Beschreibungen der nichtstationären Glimmentladung^{11,15,21-24} stützen sich auf experimentell oder theoretisch begründete Ansätze, mit deren Hilfe das elektrische Verhalten der Entladung in der Nachbarschaft eines stationären Arbeitspunktes erfaßt werden kann. Wegen der schon im stationären Fall

⁶ BADAREU, E., I. POPESCU et I. JOVA: Ann. Phys. **5**, 308 (1960).

⁷ ECKER, G., and K. G. MÜLLER: US Army Technical Rep. FTR 2.

⁸ KLARFELD, B.: Z. Physik **38**, 289 (1926).

⁹ LOH, H. Y., and G. H. DIEKE: J. Opt. Soc. Amer. **37**, 837 (1947).

¹⁰ YEH, CH.: J. Appl. Phys. **27**, 98 (1956).

¹¹ GERSTEN, G. W.: Diss. Hannover 1956.

¹² AHSMANN, G., and H. S. OSKAM: J. Appl. Phys. **29**, 1768 (1958).

¹³ AHSMANN, G. J. M.: Proc. IV. Int. Conf. on Ionization Phenomena in Gases, p. 309, 1960.

¹⁴ KREJČÍ, V.: Czech. J. Phys. **8**, 689 (1958).

¹⁵ Siehe die zusammenfassende Arbeit: VALLE, G.: Phys. Z. **22**, 473 (1942).

¹⁶ MOUSSIEGT, J.: Ann. Phys., Paris **4**, 593 (1949).

¹⁷ RITOW, H.: Phys. Rev. **86**, 130 (1952). — J. Electr. Contr. **4**, 111 (1958).

¹⁸ BRINI, D., e P. VERONESI: Nuovo Cim. **10**, 1662 (1953).

¹⁹ BRINI, D., O. RIMONDI e P. VERONESI: Nuovo Cim. **12**, 413, 915 (1954).

²⁰ ZÖLLER, O.: Diplomarbeit Bonn 1960.

²¹ KAUFMANN, W.: Ann. Phys. **2**, 174 (1900).

²² GAWEHN, H.: Ann. Phys. (5) **6**, 601 (1934).

²³ GRANOWSKY, W. L.: Der elektrische Strom im Gas, Bd. I. Berlin 1955.

²⁴ GEEL, CHR. VAN: Appl. Sci. Res. B **5**, 76 (1956).

auftauchenden Schwierigkeiten liegt eine Berechnung der nichtstationären Glimmentladung noch nicht vor.

Diese Berechnung ist das Ziel unserer Arbeit. Hierzu gehen wir von den zeitabhängigen Grundgleichungen des Kathodengebietes aus. Unter Verwendung geeigneter Näherungen erhalten wir für kleine Abweichungen von einem stationären Arbeitspunkt eine Differentialgleichung für den Entladungsstrom I und die Entladungsspannung U , die sog. differentielle Charakteristik. Die Koeffizienten dieser Gleichung werden auf Größen zurückgeführt, die sich an der stationären Entladung messen lassen. Diese differentielle Charakteristik beschreibt innerhalb ihrer Grenzen das nichtstationäre Strom-Spannungsverhalten der Glimmentladung vollständig und bildet die Grundlage von Stabilitätsuntersuchungen.

Grundzüge der nichtstationären Beschreibung

Vor der eigentlichen Untersuchung wollen wir uns kurz mit den Begriffen „stationär“ und „nichtstationär“ beschäftigen. Bei der experimentellen Bestimmung einer Strom-Spannungs-Charakteristik zeigt sich, wie problematisch schon der Begriff einer stationären Glimmentladung ist. Um zu einigermaßen reproduzierbaren Meßwerten zu kommen, muß man bestimmte Meßverfahren anwenden, und selbst dann sind die Meßwerte nur innerhalb kleiner Zeitspannen konstant. Wir beziehen daher den Begriff nichtstationär auf ein bestimmtes Zeitintervall Δt_u , innerhalb dessen sich die Entladungsparameter wesentlich ändern sollen. Mit der Vorgabe von Δt_u berücksichtigen wir jeweils nur bestimmte nichtstationäre Mechanismen der Entladung.

Wir können jetzt drei Arten von Vorgängen unterscheiden:

I. Vorgänge, die gemessen an Δt_u schnell verlaufen. Die entsprechenden Einstell- bzw. Relaxationszeiten können wir vernachlässigen.

II. Vorgänge, deren Relaxationszeiten in der Größenordnung von Δt_u liegen. Diese Vorgänge liefern die nichtstationären Effekte unserer Beschreibung.

III. Vorgänge, die gemessen an Δt_u langsam verlaufen. Diese Vorgänge können wir bei der Berechnung als stationär betrachten.

Als wichtige Relaxationszeiten im kathodischen Gebiet der Glimmentladung berücksichtigen wir die Laufzeit der verschiedenen Teilchenarten durch den Kathodenfallraum. Bei geeigneter Wahl von Δt_u können wir die einzelnen Laufzeiteffekte getrennt berücksichtigen. Wir beschränken uns auf eine Beschreibung mit Δt_u in der Größenordnung der Ionenlaufzeit (Fall a) und in der Größenordnung der Diffusionszeit der Metastabilen vom Glimmlicht zur Kathode (Fall b). Die Elektronen-

bewegung im Fallraum rechnet in beiden Fällen zur Gruppe I. Bei der Berechnung des Elektronenstromes können wir daher die Entladungsparameter (mit der charakteristischen Zeitspanne Δt_u) als konstant betrachten. Das gleiche gilt für den Ionenstrom im Fall b.

Bisherige Ansätze zur nichtstationären Beschreibung

GRANOWSKY²³ untersucht eine räumlich homogene Gasentladung in der Nachbarschaft eines stationären Punktes (I_0, U_0) nach der Methode der kleinen Störungen

$$\left. \begin{aligned} I &= I_0 + I_1; & |I_1| &\ll |I_0|; & \frac{dI_0}{dt} &= 0 \\ U &= U_0 + U_1; & |U_1| &\ll |U_0|; & \frac{dU_0}{dt} &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

Für die Größen I_1 und U_1 erhält er die differentielle Charakteristik

$$\sum_{i=0}^n \left(a_i \frac{d^i I_1}{dt^i} + b_i \frac{d^i U_1}{dt^i} \right) = 0. \quad (2)$$

Die Koeffizienten (a_i, b_i) hängen von der Wahl des stationären Punktes ab. Wegen der Voraussetzung der räumlichen Homogenität läßt sich (2) ohne eingehende Prüfung auf den Kathodenfallraum nicht anwenden.

Auf Grund theoretischer Überlegung oder experimenteller Erfahrung gelang es verschiedenen Autoren, eine Gleichung von der Form (2) für den Kathodenfallraum abzuleiten.

KAUFMANN²¹ ordnete der Entladung ein Ersatzschaltbild (s. Fig. 1) zu und erhielt die Differentialgleichung

$$\left. \begin{aligned} R_i I_1 - L \frac{dI_1}{dt} \\ = U_1 + R_i C \frac{dU_1}{dt} + L C \frac{d^2 U_1}{dt^2} \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

Für eine Entladung in einem äußeren Schaltkreis mit einer Gleichspannungsquelle und einem Vorwiderstand R_a gab er die beiden Stabilitätsbedingungen

$$R_a + R_i > 0 \quad (4)$$

$$R_a C R_i + L > 0 \quad (5)$$

an.

Bei der experimentellen Untersuchung von Glimmintermittenzen fand GAWEHN²², daß die Entladung in der Nachbarschaft der stationären

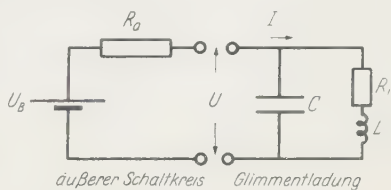


Fig. 1. Ersatzschaltbild einer Glimmentladung in einem äußeren Schaltkreis. Kenngrößen des äußeren Schaltkreises: Batteriespannung U_B , Vorwiderstand R_a ; Kenngröße der Glimmentladung: differentieller Widerstand R_i ; Induktivität L ; Kapazität C

Charakteristik durch zwei der drei Größen I , dI/dt , U vollständig bestimmt ist. Für kleine Störungen ergibt sich hieraus die differentielle Charakteristik

$$R_i I_1 + L \frac{dI_1}{dt} = U_1. \quad (6)$$

Eine ähnliche Darstellung wird auch von anderen Autoren¹⁵ verwendet.

VAN GEEL²⁴ untersucht zwei Fälle von nichtstationären Entladungen, die er durch formale Betrachtungen herleitet. Für den einfachsten Fall erhält er

$$R_i I_1 + L \frac{dI_1}{dt} = U_1 + \tau \frac{dU_1}{dt}, \quad (7)$$

während er unter Berücksichtigung von Nachwirkungseffekten eine Differentialgleichung 2. Ordnung in I_1 und U_1 findet. Die Gl. (7) läßt sich zur Deutung von gemessenen Impedanzdiagrammen und zur Stabilitätsuntersuchung heranziehen.

Aus einer experimentell gefundenen Beziehung über die relative Änderung des Entladungswiderstandes gewinnt GERSTEN¹¹ ebenfalls eine Gleichung von der Form (7). Die Zeitkonstante τ ermittelt GERSTEN in einer Energiebilanzbetrachtung.

Zusammenfassend können wir feststellen, daß eine systematische Berechnung der nichtstationären Glimmentladung noch nicht vorliegt. Die verschiedenen angeführten Beschreibungen Gl. (3), (6), (7) fußen auf verschiedenen experimentell oder theoretisch begründeten Annahmen, wodurch ein Vergleich der einzelnen Methoden erschwert wird.

Im folgenden wollen wir für das Kathodengebiet der Glimmentladung ein zeitabhängiges Differentialgleichungssystem aufstellen und im Hinblick auf die differentielle Charakteristik auswerten.

Grundlagen der Berechnung

Wir beschränken unsere Rechnung auf ein ebenes Modell. Die Wahl des Koordinatensystems wird durch Fig. 2 veranschaulicht. Unsere

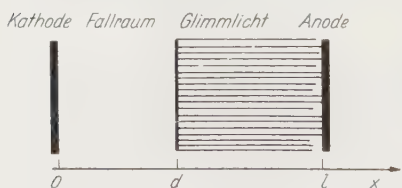


Fig. 2. Wahl des Koordinatensystems

Beschreibung erfaßt nur die Entladungsgebiete Kathodenfall und negatives Glimmlicht und entspricht damit experimentell einer ebenen Entladungsanordnung, bei der die Anode ins negative Glimmlicht taucht.

Bei der Untersuchung unterscheiden wir, wie allgemein üblich, die beiden Modellzonen Fallraum und negatives Glimmlicht, die wir getrennt beschreiben und durch geeignete Randbedingungen aneinanderknüpfen wollen. Die uns interessierenden Größen $U(t)$ und $I(t)$ lassen

sich darstellen als

$$U(t) = - \int_0^l E(x, t) dx \quad (8)$$

$$I(t) = F \left[i(o, t) + \varepsilon_0 \frac{dE(o, t)}{dt} \right], \quad (9)$$

wenn i die Stromdichte, E die elektrische Feldstärke, F die vom Glimmlicht bedeckte Fläche und ε_0 die Dielektrizitätskonstante des Vakuums bedeuten. Der zweite Term in Gl. (9) wird durch die Flächenladung auf der Kathode bedingt.

Wegen der relativ hohen Leitfähigkeit kann der Spannungsbedarf des Glimmlichts gegenüber dem des Fallraums vernachlässigt werden; die Integration in Gl. (8) ist also nur bis d auszuführen (s. Fig. 2). Die Eigenschaften des negativen Glimmlichts gehen daher allein über die Randbedingungen in die Rechnung ein, und das Problem reduziert sich auf die Ermittlung der kathodischen Stromdichte $i(o, t)$ und der elektrischen Feldstärke $E(x, t)$ im Bereich des Fallraums.

Als Ausgangsgleichungen verwenden wir:

$$e \frac{\partial n_-}{\partial t} = \frac{\partial i_-}{\partial x} + \alpha |i_-| \quad \text{Teilchenbilanz der Elektronen} \quad (10)$$

$$e \frac{\partial n_+}{\partial t} = - \frac{\partial i_+}{\partial x} + \alpha |i_+| \quad \text{Teilchenbilanz der Ionen} \quad (11)$$

$$v_+ = \frac{i_+}{en_+} = -k \sqrt{-\frac{E}{p}} \quad \text{Bewegungsgleichung der Ionen} \quad (12)$$

$$\varepsilon_0 \frac{\partial E}{\partial x} = e n_+ \quad \text{Poisson-Gleichung.} \quad (13)$$

Die Trägererzeugung im Volumen wird durch den ersten Townsendschen Koeffizienten α berücksichtigt. Wegen der hohen Geschwindigkeit der Elektronen im Fallraum können wir n_- gegenüber n_+ und damit die Bewegungsgleichung der Elektronen vernachlässigen.

Für den Koeffizienten k der Ionendrift in Gl. (12) wird bei WANNIER²⁵ $k = 1,147 \sqrt{e \lambda_+ p / M_+}$ und bei BADAREU et al.⁶ $k = \sqrt{2e / M_+ Q \pi}$ angegeben (λ_+ = mittlere freie Weglänge des Ions im Fallraum; M_+ = Masse des Ions; Q = mittlerer Umladungsquerschnitt des Ions im Fallraum). Wir lassen den genauen Zahlwert von k offen.

Grundsätzlich wäre neben den Gln. (10) bis (13) noch die Energiebilanzgleichung zu berücksichtigen. Da aber alle Temperatureffekte im Vergleich zu den hier untersuchten nichtstationären Vorgängen sehr langsam verlaufen, betrachten wir bei der Auswertung der Gln. (10) bis (13) die Temperatur als stationär.

²⁵ WANNIER, G. H.: Phys. Rev. **83**, 281 (1951); **87**, 708 (1953).

Zu dem Differentialgleichungssystem (10) bis (13) kommen noch die üblichen Randbedingungen^{2,5} am Glimmsaum

$$E(d, t) = 0 \quad (14)$$

$$i_+(d, t) = \delta i_-(d, t) \quad (15)$$

hinzu. Bei der Formulierung der kathodischen Randbedingung müssen wir die beiden auf S. 42 geschilderten Fälle a und b unterscheiden. Im Fall a verursacht die Ionenlaufzeit die typischen nichtstationären Effekte, wir berücksichtigen an der Kathode nur den Hauptanteil der Elektronenauslösung durch Ionen:

$$i_-(0, t) = \gamma_+ i_+(0, t). \quad (16a)$$

Der Fall b untersucht den Einfluß der Laufzeit der Metastabilen vom Glimmsaum zur Kathode. Wir erfassen die entsprechende kathodische Elektronenauslösung durch einen Korrekturterm zu (16a). Zu seiner Berechnung verwenden wir folgende Modellvorstellung. Ionen und Metastabile wandern von ihrem Erzeugungsort zur Kathode, wobei die Metastabilen wegen der relativ zur Ionendrift langsamen Diffusion verzögert an der Kathode auftreffen. Die mittlere Verzögerung sei durch die mittlere Diffusionszeit τ_m gekennzeichnet. Nehmen wir Proportionalität zwischen dem kathodischen Ionenstrom und dem zugehörigen, verzögerten kathodischen Strom der Metastabilen an, so können wir die Elektronenauslösung durch Metastabile mit dem Ansatz $\gamma_m i_+(0, t - \tau_m)$ berücksichtigen. Dies führt zur kathodischen Randbedingung

$$i_-(0, t) = \gamma_+ i_+(0, t) + \gamma_m i_+(0, t - \tau_m). \quad (16b)$$

Durch geeignete Näherungen und Lösungsansätze wollen wir die Grundgleichungen des Fallraums (8) bis (16) auf eine auswertbare Form bringen.

Berechnung des Fallraums

Wie wir auf S. 43 ausführten, läßt sich für die Fälle a und b der Elektronenstrom wie bei zeitlich konstanten Parametern berechnen. Wir erhalten damit aus Gl. (7):

$$i_-(d, t) = i_-(0, t) \exp \left\{ \int_0^d \alpha(x, t) dx \right\}. \quad (17)$$

Der Elektronenstrom wächst von der Kathode zum Glimmsaum hin exponentiell an, das Hauptionisationsgebiet liegt in der Nähe des Glimmsaums. Dieses Verhalten führt uns zu folgendem Modell.

Die gesamte Ionisation des Fallraums verlegen wir in ein glimmsaumnahes Ionisationsgebiet $\mu d \leq x \leq d$. Der Feldverlauf außerhalb berechnet sich mit $\alpha = 0$ aus der Raumladungsbewegung der Ionen (11), (12), (13).

Das Feld im Innern wird durch einen vom Experiment nahegelegten, linearen Ansatz erfaßt. Die Grenze bei $x = \mu d$ wählen wir so, daß einerseits das empirisch beschriebene Ionisationsgebiet möglichst klein ist, andererseits die Voraussetzung $\alpha = 0$ außerhalb des Ionisationsgebietes einen möglichst geringen Fehler verursacht.

Wählen wir den geeigneten Wert $\mu = 3/4$ als Grenze, so liefert die Integration der Poisson-Gleichung (13) mit der Randbedingung (14)

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon_0 E(x, t) &= \int_{\frac{3}{4}d}^x n_+(\xi, t) d\xi - \frac{1}{4} d e n_+(\frac{3}{4}d, t) & 0 \leq x \leq \frac{3}{4}d \\ \varepsilon_0 E(x, t) &= [x - d] e n_+(\frac{3}{4}d, t) & \frac{3}{4}d \leq x \leq d. \end{aligned} \right\} \quad (18)$$

Die Wahl $\mu = 3/4$ wird von ECKER und MÜLLER⁷ am stationären Feldverlauf geprüft.

Wir werten jetzt die Randbedingungen Gln. (15), (16) und (17) aus. Die Zahl der je Zeiteinheit im gesamten Fallraum erzeugten Ladungsträger dN_{\pm}/dt berechnet sich aus Gl. (17) zu

$$\frac{dN_{\pm}}{dt} = F i_{\pm}(o, t) [\exp A(t) - 1] \quad (19)$$

mit

$$A(t) = \int_0^d \alpha(x, t) dx. \quad (20)$$

In Übereinklang mit dem bisher verwendeten Modell lassen wir die gesamten im Fallraum erzeugten Ionen (19) an der Stelle $x = 3d/4$ aus dem Ionisationsgebiet heraustreten. Hinzu kommt die Ionenstromkomponente $\delta i_{-}(d, t)$ aus dem Glimmlicht, die wegen der Laufzeit τ_{+} durch das Ionisationsgebiet verzögert ist. Wir erhalten daher aus Gln. (15), (16), (17) als Bilanz für den Ionenstrom

$$\left. \begin{aligned} i_{+}\left(\frac{3}{4}d, t\right) &= \frac{1}{F} \frac{dN_{+}}{dt} + \delta i_{-}(d, t - \tau_{+}) \\ &= \gamma_{+} i_{+}(o, t) [\exp A(t) - 1] + \\ &\quad + \gamma_{+} \delta i_{+}(o, t - \tau_{+}) \exp A(t - \tau_{+}), \end{aligned} \right\} \quad (21a)$$

$$\left. \begin{aligned} i_{+}\left(\frac{3}{4}d, t\right) &= \frac{1}{F} \frac{dN_{+}}{dt} + \delta i_{-}(d, t) \\ &= [\gamma_{+} i_{+}(o, t) + \gamma_m i_{+}(o, t - \tau_m)] \{[1 + \delta] \exp A(t) - 1\}, \end{aligned} \right\} \quad (21b)$$

wenn wir bei Fall b die Ionenlaufzeit vernachlässigen.

Die Grundgleichungen des Fallraums (8), (9), (11), (12), (18), (21) linearisieren wir für kleine Abweichungen (Index 1) vom stationären Verhalten (Index 0).

Nullte Näherung oder stationärer Fall

Im stationären Fall gewinnen wir durch Integration von (18) mit (12) und

$$\gamma_+ + \gamma_m = \gamma \quad (22)$$

die Beziehung

$$i_0 = -\frac{2}{3} \beta^{-\frac{2}{3}} (1 + \gamma) \varepsilon \frac{k}{p^{\frac{1}{2}}} \frac{U_0^{\frac{3}{2}}}{d_0^{\frac{3}{2}}} = -1,745 (1 + \gamma) \varepsilon_0 \frac{k}{p^{\frac{1}{2}}} \frac{U_0^{\frac{3}{2}}}{d_0^{\frac{3}{2}}} \quad (23)$$

mit

$$\beta = \frac{11}{20} \left(\frac{11}{12} \right)^{\frac{2}{3}} + \frac{1}{40} \left(\frac{1}{6} \right)^{\frac{2}{3}}. \quad (24)$$

Bis auf den Zahlenfaktor 1,745 findet sich Gl. (23) auch bei anderen Autoren. Die Näherungen $\alpha = \text{const.}$ bzw. $\alpha = 0$ im ganzen Fallraum^{2, 5, 6, 26} führen zu den Faktoren 2,6 bzw. 1,4. Wegen der ungenügenden Kenntnis der beteiligten Elementarprozesse läßt sich der Zahlenfaktor schlecht experimentell überprüfen.

Die nullte Näherung der Gl. (21) führt zur Stationaritätsbedingung

$$1 = \gamma [(1 + \delta) \exp A_0 - 1], \quad (25)$$

die auch bei NEU⁵ oder in ähnlicher Form bei WEIZEL² hergeleitet wird.

Für die erste Näherung benötigen wir außerdem noch die Ionenflugzeit durch den Ionisationsbereich $3d/4 \leq x \leq d$

$$\tau_{\pm} = \int_{d_0}^{\frac{3}{2}d_0} \frac{dx}{v_{\pm 0}} = 0,659 \frac{p^{\frac{1}{2}}}{k} \frac{d_0^{\frac{3}{2}}}{U_0^{\frac{1}{2}}} \quad (26)$$

und die Ionenflugzeit durch den Bereich $0 \leq x \leq 3d/4$

$$\tau_{+}^{*} = \int_{\frac{3}{2}d_0}^0 \frac{dx}{v_{+0}} = 0,698 \frac{p^{\frac{1}{2}}}{k} \frac{d_0^{\frac{3}{2}}}{U_0^{\frac{1}{2}}}. \quad (27)$$

Erste Näherung

In erster oder linearer Näherung erhalten wir

$$U' = \frac{19}{16 \cdot \beta} 6^{-\frac{2}{3}} d' + \int_0^{\frac{3}{2}} E'(X, T) dX - \frac{1}{32} \frac{\partial E'}{\partial T} \Big|_{\frac{3}{2}, T}, \quad (28)$$

$$I' = i'(0, T) + \frac{1}{1 + \gamma} \frac{\beta}{2} 6^{\frac{2}{3}} \frac{\partial E'}{\partial T} \Big|_{0, T}, \quad (29a)$$

$$I' = \frac{1}{1 + \gamma'} [(1 + \gamma_+) i'(0, T_b) + \gamma_m i'(0, T_b - 1)], \quad (29b)$$

²⁶ WARREN, R.W.: Phys. Rev. **98**, 1650, 1658 (1955).

$$\frac{\beta}{2} 6^{\frac{3}{2}} \frac{\partial n'}{\partial T} = \frac{\partial i'}{\partial X}, \quad (30a)$$

$$0 = \frac{\partial i'}{\partial X}, \quad (30b)$$

$$i' \left[\frac{11}{12} - X \right]^{\frac{3}{2}} - \frac{3\beta}{2} n' \left[\frac{11}{12} - X \right] - \frac{\beta}{2} E' = 0, \quad (31)$$

$$E' = \frac{11}{2\beta} 6^{-\frac{3}{2}} d' + \int_{\frac{11}{12}}^{\frac{3}{4}} n'(\Xi, T) d\Xi + \frac{1}{4} n' \left(\frac{3}{4}, T \right), \quad (32)$$

$$\left. \begin{aligned} & \frac{1-\gamma}{1+\delta} i'(0, T) + \delta \frac{1-\gamma}{1+\delta} i'(0, T-1) - i' \left(\frac{3}{4}, T \right) + \\ & + A_0 \frac{1+\gamma}{1+\delta} A'(T) + A_0 \delta \frac{1+\gamma}{1+\delta} A'(T-1) = 0, \end{aligned} \right\} \quad (33a)$$

$$\frac{\gamma_m}{\gamma} [i'(0, T_b) - i'(0, T_b - 1)] - (1 + \gamma) A_0 A'(T_b) = 0, \quad (33b)$$

wenn wir die neuen Veränderlichen

$$\begin{aligned} I' &= \frac{I_1}{F i_0}; \quad i' = \frac{(1+\gamma) i_{+1}}{i_0}; \quad U' = \frac{U_1}{U_0}; \quad E' = -\frac{E_1 d_0}{U_0}; \\ n' &= \frac{e d_0^2}{\varepsilon_0 U_0} n_{+1}; \quad X = \frac{\kappa}{d_0}; \quad \Xi = \frac{\xi}{d_0}; \\ T &= \frac{t}{\tau_+}; \quad T_b = \frac{t}{\tau_m} \end{aligned}$$

und die Ergebnisse der nullten Näherung benutzen.

Wir wenden uns jetzt der Berechnung von A' zu. Mit A hatten wir die mittlere Zahl der Ionisationsakte eines Elektrons auf dem Wege von der Kathode zum Glimmsaum bezeichnet. Entsprechend der Näherung von NEU⁵ zur Bestimmung von α im Fallraum fassen wir A als Funktion von U und d auf. Dieser funktionale Zusammenhang liefert nach der Linearisierung

$$A' = a U' + b d'. \quad (34)$$

Die Koeffizienten a und b lassen sich an Hand folgender Überlegung abschätzen. Die an der Kathode und im Fallraum erzeugten Elektronen erreichen sehr bald Strahlcharakter²⁷ und kommen damit in den Bereich nahezu konstanter differentieller Ionisierung. Eine Veränderung der Fallraumspannung um den Wert U_1 wird daher A nur geringfügig verändern, wogegen eine Veränderung der Fallraumdicke um den Wert d_1 ein zu d_1 ungefähr proportionales A_1 bedingt. Dies führt zu

$$b \approx 1. \quad (35)$$

²⁷ ECKER, G., u. K. G. MÜLLER: Z. Naturforsch. **16a**, 246 (1961).

Das Verhältnis a/b können wir durch eine Variation mit $A' = 0$ ermitteln. Eine solche Variation von U und d liegt aber im stationären Fall vor. Ersetzen wir die kleinen Größen U_1 und d_1 durch ihre Differentiale, so erhalten wir

$$-\frac{a}{b} = \frac{d'}{U'} \bigg|_{A'=0} \approx \frac{d \ln d_0}{d \ln U_0}. \quad (36)$$

Numerische Ergebnisse

Zur Auswertung des Differentialgleichungssystems (28) bis (34) führen wir für die einzelnen Entladungsparameter die ersten Glieder ihrer Taylor-Entwicklung nach X und T (Fall a) bzw. nach T_b (Fall b) ein. Durch Koeffizientenvergleich erhalten wir ein System von linearen Gleichungen in den Entladungsgrößen I' , i' , U' , E' , n' , d' und deren Ableitungen. Lösen wir dieses Gleichungssystem auf, so können wir die einzelnen zeitlichen Ableitungen der aufgeführten Größen durch die zeitlichen Ableitungen des Stromes I' bzw. der Spannung U' ausdrücken, insbesondere finden wir

$$I' = \sum_0^n a_i \frac{d^i U'}{dT^i}. \quad (37)$$

In die Koeffizienten a_i gehen noch die Größen a , A_0 , γ , γ_m als Parameter ein.

Die Güte der Näherungslösung (37) wird durch die Zahl der mitgeführten Glieder der Taylor-Entwicklung und von der speziellen Art der Störung $U'(t)$ bestimmt.

Eine Umformung von Gl. (37) und deren Ableitung führt zu einer differentiellen Charakteristik in der Gestalt

$$\left. \begin{aligned} R' I' + L' \frac{dI'}{dT} &= U' + R' C' \frac{dU'}{dT} - L' C' \frac{d^2 U'}{dT^2} + \sum_3^{n-1} b_i \frac{d^i U'}{dT^i} \\ &= \sum_0^{n+1} b_i \frac{d^i U'}{dT^i} \end{aligned} \right\} \quad (38)$$

Wie ein Vergleich von Gl. (38) mit Gl. (3) zeigt, entspricht die Ersatzschaltung aus Ohmschem Widerstand R' , Induktivität L' und Kapazität C' (s. Fig. 1) einer Näherung, bei der in Gl. (38) die Summe über die Glieder $b_i d^i U'/dT^i$ mit $i \geq 3$ vernachlässigt werden kann.

Die Schaltkreisgrößen in Gl. (38) sind mit einem Apostroph gekennzeichnet, da sie sich auf Strom, Spannung und Zeit in den transformierten Größen beziehen. Eine Umrechnung auf die ursprünglichen Größen ergibt:

$$R_i = R' \frac{U_0}{|I_0|}, \quad (39a, b)$$

$$a) \quad L = L' \frac{U_0}{|I_0|} \tau_+; \quad b) \quad L = L' \frac{U_0}{|I_0|} \tau_m, \quad (40)$$

$$a) \quad C = C' \frac{|I_0|}{U_0} \tau_+ = C' \cdot 1,15 \cdot (1 + \gamma) \varepsilon_0 F d_0; \quad b) \quad C = C' \frac{U_0}{|I_0|} \tau_m. \quad (41)$$

Wir haben das lineare Gleichungssystem der beiden Fälle a und b mit Hilfe des elektronischen Rechenautomaten ER 56 des Instituts für Angewandte Mathematik der Universität Bonn aufgelöst und die Größen R' , L' , C' , b_i für geeignete Werte der Parameter a , A_0 , γ , γ_m berechnet. Dabei veränderten wir die Parameter in dem für die Anwendung wichtigen Bereich:

$$\begin{aligned} 0,2 \leq a \leq 0,4; \quad 0,5 \leq A_0 \leq 2,5 \\ 0,025 \leq \gamma \leq 0,2; \quad 0,1 \leq \gamma_m/\gamma \leq 0,2. \end{aligned}$$

Den durch das Abbrechen der X -Reihenentwicklung bedingten Fehler konnten wir am stationären Fall überprüfen, bei 40 mitgeführten X -Entwicklungsgliedern fanden wir einen Fehler unterhalb von $1\%_{00}$. Im berechneten Parameterbereich ergab sich mit Ausnahme der ersten Glieder (im allgemeinen $i \geq 3$) eine alternierende Folge der b_i . Diese Eigenschaft der b_i erleichtert eine Fehlerabschätzung für das Abbrechen der T -Entwicklung.

Wir beschränken uns bei der Fehlerbetrachtung auf solche Störungen $U'(t)$, für welche die Glieder $b_i d^i U'/dT^i$ oder, im Falle einer periodischen Störung

$$U' = u e^{i\Omega T}; \quad \Omega = \omega \tau_m^+ = 2\pi \nu \tau_m^+, \quad (42)$$

Realteil und Imaginärteil dieser Glieder für $i \geq 3$ eine alternierende Folge bilden. Unter dieser Beschränkung läßt sich die Differentialgleichung (3) der Ersatzschaltung an Stelle von Gl. (38) verwenden, wenn bei reellem $d^i U'/dT^i$

$$\left| R' C' \frac{dU'}{dT} \right| \gg \left| b_3 \frac{d^3 U'}{dT^3} \right| \quad (43)$$

bzw. bei einer periodischen Störung (42)

$$\left. \begin{aligned} |R' C'| &\gg |b_3 \Omega^2| \\ |L' C'| &\gg |b_4 \Omega^2| \end{aligned} \right\} \quad (44)$$

erfüllt sind. Nehmen wir im Fall a den Wertebereich

$$\begin{aligned} 0,2 \leq a \leq 0,4 \quad A_0 = 0,5 \quad 0,025 \leq \gamma \leq 0,2; \\ a = 0,2 \quad A_0 = 1,0 \quad 0,05 \leq \gamma \leq 0,2 \\ a = 0,3; 0,4 \quad A_0 = 1,0 \quad 0,125 \leq \gamma \leq 0,2 \end{aligned}$$

aus, so zeigt die Rechnung in dem untersuchten Bereich

$$\left. \begin{aligned} |R' C'| &\geq |b_3| \\ |L' C'| &\geq |b_4| \end{aligned} \right\} \quad (45)$$

Bei einer periodischen Störung führt dies zu der einfachen Voraussetzung der Anwendbarkeit von Gl. (3):

$$1 \gg \Omega^2. \quad (46)$$

Die Schaltkreisgrößen R' , L' , C' lassen sich im Falle b explizit angeben:

$$R' = \frac{1}{2,5a + 1,5}, \quad (47)$$

$$L' = R' \left[\frac{\gamma_m}{1 + \gamma} \left[1 + \frac{2,5}{\gamma \cdot A_0} \right] \left[0,5 + \frac{2,5\gamma_m}{\gamma(1 + \gamma)A_0} \right] \right], \quad (48)$$

$$C' = \frac{L'}{R'^2} - \frac{1}{R'} \left[1 + \frac{2,5}{\gamma \cdot A_0} \right] \frac{\gamma_m}{1 + \gamma}. \quad (49)$$

Im Falle a gilt ebenfalls Gl. (47), die Größen L' und C' sind in Fig. 3 bis 5 aufgetragen. Der sich ergebende Wert der Kapazität der Entladung liegt im Fall a in der Größenordnung des auch anschaulichen Werts des Fallraumkondensators $\epsilon_0 F d_0$. Der entsprechende Wert der Induktivität (40a) zeigt Proportionalität zur Ionenflugzeit durch den Fallraum. Dieses Verhalten wurde auch schon von anderen Autoren^{12,13} angegeben.

Anwendung

In den vorangehenden Abschnitten haben wir die differentielle Charakteristik einer Glimmentladung hergeleitet und in die Form der Differentialgleichung einer Ersatzschaltung überführt. Zwei verschiedene Fälle werden unterschieden. Im Fall a ist die Laufzeit der Ionen im Fallraum für die nichtstationären Effekte verantwortlich. Der Fall b behandelt den Einfluß der kathodischen Elektronenemission durch Metastabile. Diesen Fall b können wir erweitern auf folgenden allgemeineren Fall. An der Kathode unterscheiden wir die übliche Elektronenstromkomponente, die proportional zum momentanen Ionenstrom ist, und eine Elektronenstromkomponente, die proportional zum Ionenstrom eines früheren Zeitpunkts ist und den Bruchteil γ_m/γ ausmacht. Die Verzögerungszeit τ_m dieser zweiten Komponente kann durch irgendwelche Laufzeit- oder Hystereseeffekte bedingt sein, muß jedoch wesentlich größer als die Ionenlaufzeit sein.

Die Schaltkreisgrößen R' , L' , C' ermöglichen eine Stabilitätsuntersuchung der Entladung an Hand der Stabilitätsbedingungen (4) und (5), wobei allerdings noch die Bedingung (43) bzw. (44) für die Anwendbarkeit der Ersatzschaltung gelten muß.

Die differentielle Charakteristik (38) läßt die Konstruktion eines Impedanzdiagramms $Z' = U'/I' = Z'(\Omega)$ zu. Zur Vereinfachung vernachlässigen wir jetzt $d^i U'/d T^i$ mit $i \geq 2$ und erhalten das Diagramm

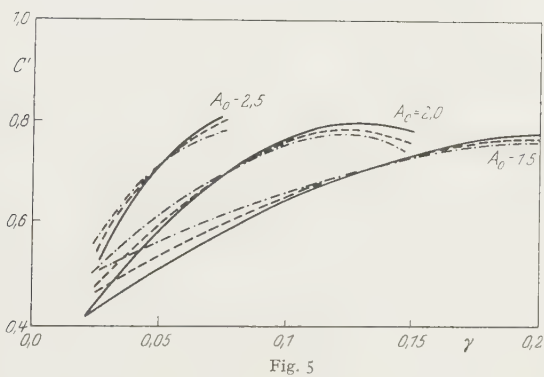
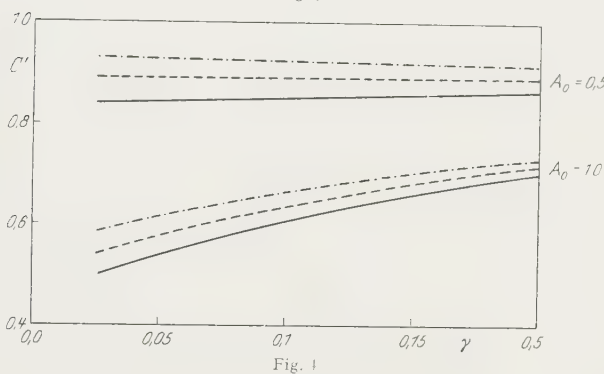
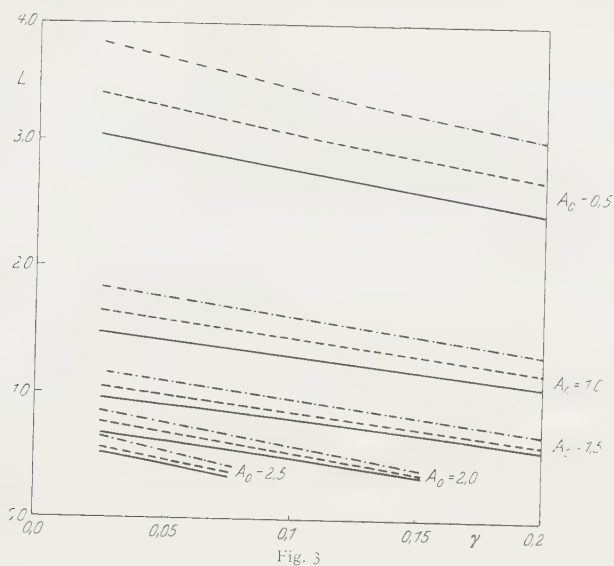


Fig. 3—5. Selbstinduktion L' und Kapazität C' einer Glimmentladung im Fall a) für verschiedene Werte der Entladungsparameter a , A_0 , γ . Die unterschiedlichen a -Werte werden durch verschiedene Zeichnung der Kurven charakterisiert; — $a = 0,4$; - - - $a = 0,3$; - · - · $a = 0,2$

der Fig. 6, einen Halbkreis oberhalb der reellen Achse, wenn wir die Werte $R' = 0,4$; $L' = 1,0$; $C' = 0,8$ zugrundelegen. Wegen der Vernachlässigung der höheren Ableitungen von U' gibt die gezeichnete Kurve den richtigen Verlauf der Impedanz nur im Anfang des linken Astes wieder. Der charakteristische Verlauf der Impedanz in diesem Bereich wird durch die Messungen^{10,12,13} bestätigt. Die Verschiebung der Impedanzkurven bei YEH¹⁰ mit steigender Stromstärke läßt sich aus den Ergebnissen des Falls a erklären [s. Gl. (39a), (40a), (41a)]. Die Impedanzkurven von AHSMANN und OSKAM^{12,13} und die Messungen von

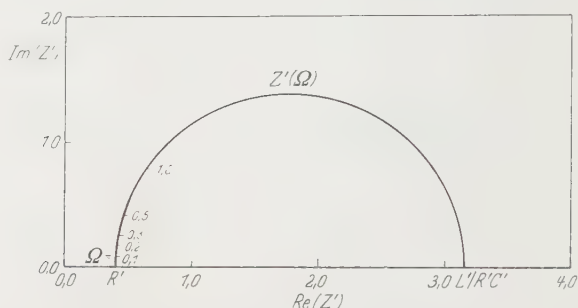


Fig. 6. Impedanz $Z' = U'/I'$ einer Glimmentladung für kleine sinusförmige Störungen der Frequenz $\Omega = \omega \cdot \tau_+$. R' , L' , C' bedeuten die transformierten Werte des differentiellen Widerstandes R_t , der Induktivität L und der Kapazität C der Entladung

KREJČÍ¹⁴ deuten wegen der im Vergleich zur reziproken Ionenlaufzeit niedrigen Frequenzen auf einen Prozeß der Art b hin.

Da wir bei unseren Berechnungen konstante zeitliche Ausdehnung der Entladung angenommen haben, muß diese Voraussetzung für den Bereich des normalen Kathodenfalls überprüft werden. STEENBECK²⁸ bestimmte die seitliche Ausbreitungsgeschwindigkeit einer normalen Glimmentladung unabhängig vom Gasdruck zu einigen m/sec. Bei genügend hohen Kreisfrequenzen ω einer periodischen Störung läßt sich daher unsere Rechnung auch auf die normale Glimmentladung anwenden.

Herrn Dipl.-Math. G. SCHRÖDER aus dem Institut für Angewandte Mathematik der Universität Bonn danke ich für seine Unterstützung beim Programmieren des Problems zur numerischen Auswertung am ER 56.

²⁸ STEENBECK, M.: Arch. Elektrotechn. **26**, 306 (1932).

Aus dem I. Physikalischen Institut der Technischen Universität Berlin

Beugung von Elektronenwellen an magnetischen Strukturen

Von

H. BOERSCH, H. HAMISCH, D. WOHLLEBEN und K. GROHMANN

(Eingegangen am 12. Mai 1961)

Magnetfelder stellen für Elektronenwellen Phasenobjekte dar, an denen Beugung auftreten kann. Mit der Kirchhoffschen Formel wird das Beugungsbild berechnet, das hinter einem Objekt mit schwach ablenkendem Magnetfeld entsteht.

Die ψ -Funktion der Elektronen läßt sich bekanntlich analog der optischen Erregung mit der Kirchhoffschen Beugungstheorie behandeln. (Vgl. z. B. die Elektronenbeugungsversuche an der Halbebene¹.)

Das Kirchhoffsche Beugungsintegral gibt die skalare Amplitude einer Welle im Punkt P , wenn Amplitude und Phase dieser Welle auf einem den Punkt P umschließenden Schirm bekannt sind. Für den Spezialfall einer punktförmigen Quelle lautet das Integral:

$$\left. \begin{aligned} \psi(u, v) &= C \cdot \int_{\text{Schirm}} e^{-i k \cdot s(\xi, \eta, u, v)} \cdot d\xi \cdot d\eta \\ s(\xi, \eta, u, v) &= r_Q(\xi, \eta) + r_P(\xi, \eta, u, v) \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

C = komplexe Konstante,

k = Wellenzahl,

ξ, η = Koordinaten des Integrationspunktes I in der Schirmebene,

u, v = Koordinaten des Aufpunktes P in der Beobachtungsebene,

r_Q = Abstand Quelle—Integrationspunkt,

r_P = Abstand Integrationspunkt—Aufpunkt.

Diese Schreibweise des Integrals gilt unter folgenden Voraussetzungen:

1. Die Wellenlänge λ sei klein gegen den Durchmesser des Schirmbereichs, dessen Flächenelemente zur Beugungsfigur beitragen.

2. Dieser Durchmesser sei seinerseits gegen die Abstände Quelle—Schirm (x) und Schirm—Beobachtungsebene (y) so klein, daß die Amplitude der von der Quelle Q her einlaufenden Primärwelle im beugenden Schirmbereich konstant bleibt und auch keine Entfernungsabhängigkeit der Amplitude der vom Integrationspunkt I kommenden Beugungswellen im Aufpunkt P auftritt.

¹ BOERSCH, H.: Naturwissenschaften **28**, 711 (1940).

In die Schirmebene wird ein „dünnes“ Objekt gebracht. Es verändere Amplitude und Phase der Primärwelle. Unter dem Integral (1) tritt dann in bekannter Weise eine komplexe Objektfunktion hinzu:

$$\psi(u, v) = C \cdot \int_{\text{Schirm}} O(\xi, \eta) \cdot e^{-i\varphi(\xi, \eta)} \cdot e^{-iks(\xi, \eta, u, v)} \cdot d\xi \cdot d\eta \quad (2)$$

$O(\xi, \eta)$ gibt die Änderung der Amplitude,
 $\varphi(\xi, \eta)$ die Phasenschiebung durch das Objekt wieder.

Die Phasenschiebung $\varphi(\xi, \eta)$ durch das Objekt in (2) resultiert aus der Wirkung schwach ablenkender elektrischer und magnetischer Felder. Die Phasenschiebung φ_E durch ein *elektrisches* Potential ist eine eindeutige Funktion der Koordinaten ξ und η des Integrationspunktes. Die *magnetische* Phasenschiebung ergibt sich nach EHRENBERG und SIDAY² und AHARONOV und BOHM³ aus

$$\varphi_M = \frac{e}{\hbar} \int_Q^I \mathfrak{A} d\mathfrak{s} \quad (3)$$

\mathfrak{A} Vektorpotential, $d\mathfrak{s}$ Wegelement auf dem Strahl.

Die magnetische Phasenschiebung ist zunächst nicht eindeutig, weil für \mathfrak{A} beliebige Eichtransformationen zuzulassen sind. Das Beugungsproblem läßt sich trotzdem eindeutig formulieren, wie im folgenden gezeigt wird.

Für die Phasendifferenz zwischen zwei Teilwellen im Punkt P , die auf getrennten Wegen l und l' von Q nach P laufen, ergibt sich mit Gl. (3)²:

$$\Delta\varphi = k \cdot (l - l') + \Delta\varphi_M. \quad (4)$$

Der magnetische Anteil ist hierin:

$$\Delta\varphi_M = \frac{e}{\hbar} \left(\int_l \mathfrak{A} d\mathfrak{s} - \int_{l'} \mathfrak{A} d\mathfrak{s} \right) = \frac{e}{\hbar} \oint \mathfrak{A} d\mathfrak{s}. \quad (5)$$

Bei der Integration über den geschlossenen Weg l und l' wirkt sich die Willkür in der Bestimmung von \mathfrak{A} nicht aus. Die Phasendifferenz wird proportional dem von den Wegen l und l' eingeschlossenen magnetischen Fluß $\Phi(l, l')$:

$$\Delta\varphi_M = \frac{e}{\hbar} \oint \mathfrak{A} d\mathfrak{s} = \frac{e}{\hbar} \int_F \mathfrak{B} d\mathfrak{f} = \frac{e}{\hbar} \Phi(l, l') \quad (6)$$

\mathfrak{B} Magnetische Induktion, F von l und l' umrandete Fläche.

² EHRENBERG, W., and R.E. SIDAY: Proc. Phys. Soc. **62**, 8 (1949).

³ AHORV, Y., and D. BOHM: Phys. RARONEV. **115**, 485 (1959).

Zur Verwertung der Beziehung (6) wird die Kirchhoffsche Beugungsformel durch Multiplikation mit einem konstanten Phasenfaktor umgeformt:

$$\psi'(u, v) = e^{i\{k \cdot s(\xi_B, \eta_B, u, v) + \varphi(\xi_B, \eta_B)\}} \cdot \psi(u, v) \\ = C \int O(\xi, \eta) \cdot e^{-i k \{s(\xi, \eta, u, v) - s(\xi_B, \eta_B, u, v)\} - i \{\varphi(\xi, \eta) - \varphi(\xi_B, \eta_B)\}} \cdot d\xi \cdot d\eta. \quad (7)$$

Der Exponent dieses Ausdrucks stellt jetzt die Phasendifferenz der Beugungswelle auf dem Wege $s(\xi, \eta, u, v)$ gegen eine Bezugswelle auf dem Wege $s(\xi_B, \eta_B, u, v)$ durch den festen Punkt B der Schirmebene im Aufpunkt P dar. $\varphi(\xi, \eta) - \varphi(\xi_B, \eta_B)$ ist die Differenz der durch das Objekt erzeugten Phasenschiebungen zwischen beiden Teilwellen in P .

Die Änderung des Phasengliedes beeinflusst die Intensität der Beugungsfigur nicht:

$$|\psi|^2 = |\psi'|^2. \quad (8)$$

Die gekrümmten Bahnen l und l' in Gl. (4) lassen sich mit den Strecken $s(\xi, \eta, u, v)$ und $s(\xi_B, \eta_B, u, v)$ der Gl. (7) identifizieren, wenn die Ablenkung der Elektronen im Magnetfeld genügend schwach ist. Dann wird im rein magnetischen Fall nach Gl. (6)

$$\varphi(\xi, \eta) - \varphi(\xi_B, \eta_B) = \Delta\varphi_M = \frac{e}{\hbar} \Phi(\xi, \eta, \xi_B, \eta_B). \quad (9)$$

Die Intensität im Aufpunkt ist also gegeben durch:

$$|\psi'|^2 = \left| C \cdot \int_{\text{Schirm}} O(\xi, \eta) \cdot e^{-i k s(\xi, \eta, u, v) - \frac{i e}{\hbar} \Phi(\xi, \eta, \xi_B, \eta_B)} \cdot d\xi \cdot d\eta \right|^2. \quad (10)$$

Hierbei sind die Bezugskoordinaten ξ_B, η_B beliebig und nur nach Zweckmäßigkeitsgründen zu wählen. Unter $\Phi(\xi, \eta, \xi_B, \eta_B)$ ist der von den Strecken Quelle—Bezugspunkt (ξ_B, η_B)—Aufpunkt und Quelle—Integrationspunkt (ξ, η)—Aufpunkt eingeschlossene magnetische Fluß zu verstehen.

Bei Anwesenheit schwach ablenkender elektrischer Felder tritt zum Phasenglied in (10) noch der elektrische Anteil φ_E , der allein von ξ und η abhängt.

Mit Hilfe der Gl. (10) lassen sich die Intensitätsverteilungen unter Berücksichtigung der Beugung berechnen, wie sie z.B. bei dem von EHRENBURG und SIDAY bzw. AHARONOV und BOHM vorgeschlagenen Elektroneninterferenzversuch zum Nachweis der Phasenschiebung durch einen magnetischen Fluß^{2,3} oder an einem magnetischen Biprisma⁴ auftreten. Für diese Probleme kann Gl. (10) auf den eindimensionalen

⁴ BOERSCH, H., H. HAMISCH, D. WOHLLEBEN u. K. GROHMANN: Z. Physik **159**, 397 (1960).

Fall spezialisiert werden. Die Induktion liege parallel zur Richtung η , ihr Betrag ändere sich nur in Abhängigkeit von ξ, ζ (mit $\zeta \perp \xi, \eta$). Der Bezugspunkt B liege im Koordinatenursprung ($\xi_B = 0$). Es ergibt sich für den Fluß

$$\Phi(\xi, \eta, \zeta_B, \eta_B) = \int_0^{\xi_P} \int_{\zeta_Q} B(\xi, \zeta) \cdot d\zeta \cdot d\xi - D \int_0^{\xi} \bar{B}(\xi) \cdot d\xi \quad (11)$$

D = Dicke des Magnetfeldes der über die Koordinate ζ gemittelten Induktion $\bar{B}(\xi)$.

Für den Fraunhoferschen Fall folgt aus Gl. (10):

$$|\psi'(\varepsilon)|^2 = \left| C \int_{-\infty}^{+\infty} O(\xi) e^{\left[ik\xi\varepsilon - i \frac{De}{\hbar} \int_0^{\xi} \bar{B}(\xi) \cdot d\xi \right]} \cdot d\xi \right|^2. \quad (12)$$

Beobachtungswinkel: $\varepsilon = \arctg\left(\frac{u}{y}\right)$

und für den Fresnelschen Fall:

$$|\psi'(u)|^2 = \left| C \int_{-\infty}^{+\infty} O(\xi) e^{ik \left(\frac{1}{x} - \frac{1}{y} \right) \frac{z^2}{2} - i \frac{u}{y} \xi - i \frac{De}{\hbar} \int_0^{\xi} B(\xi) \cdot d\xi} \cdot d\xi \right|^2. \quad (13)$$

Diese Arbeit wurde durch ein Stipendium aus ERP-Mitteln unterstützt.

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Universität Göttingen

Ein Beitrag zur Theorie der inneren Feldemission*

Von

GERT EILENBERGER

Mit 3 Figuren im Text

(Eingegangen am 20. April 1961)

The internal field emission (Zener-tunneling) is examined from two directions, using a onedimensional model. In section I the transition probability is calculated using the Houston expansion, but without perturbation theory, as has been used in previous papers by other authors. The calculation permits an examination of the various perturbation approximations. It is found, that the validity of the first approximation depends critically upon the residue of the interband coupling function. This residue contains the Keldysh factor, which is determined here. In section II the transition probability is calculated using free electron functions, again without perturbation theory. The same transition probability is obtained in both cases.

I. Näherung von gebundenen Elektronen her

1. Einleitung

Von verschiedenen Autoren¹ wurde ein Verfahren entwickelt, die Übergangswahrscheinlichkeit von Elektronen unter dem Einfluß eines äußeren elektrischen Feldes aus dem Valenz- in das Leitungsband isolierender Kristalle zu berechnen; es beruht auf der Anwendung Diracscher Störungsrechnung auf das Gleichungssystem, welches man durch Entwicklung der Wellenfunktion eines Elektrons nach den Houston-Funktionen für die Entwicklungskoeffizienten aus der Schrödinger-Gleichung erhält ($\hbar = e = m = 1$):

$$i \dot{a}_n(t) = \sum_{v \neq n} a_v(t) \tilde{\gamma} \vec{\gamma}_{nv} e^{i \int \tilde{\gamma} (\vec{\gamma}_{vv} - \vec{\gamma}_{nn}) dt} e^{\frac{1}{i} \int (E_v - E_n) dt} \quad (1)$$

Die Funktionen E_v , $\vec{\gamma}_{v\mu}$ haben darin das Argument $\mathfrak{k} + \mathfrak{F}t$, wobei $E_v(\mathfrak{k})$ die Energie des v -ten Bandes in dem betrachteten Kristall bezeichnet und $\vec{\gamma}_{v\mu}(\mathfrak{k})$ definiert ist durch

$$\vec{\gamma}_{v\mu}(\mathfrak{k}) = \frac{1}{i} \int_z u_v^*(\mathfrak{k}, \mathbf{r}) \text{grad}_{\mathbf{r}} u_{\mu}(\mathfrak{k}, \mathbf{r}) d^3 r \quad (2)$$

* D 7.

¹ HOUSTON, W. V.: Phys. Rev. **57**, 184 (1940). — FRANZ, W.: Handbuch der Physik, Bd. XVII, S. 208 f. 1956. — KELDYSH, L. V.: Soviet. Phys. JETP **6**, 763 (1958). — FRANZ, W.: Z. Naturforsch. **14a**, 415 (1959).

mit den im \mathbf{r} -Raum periodischen Anteilen $u_\nu(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \psi_\nu(\mathbf{k}, \mathbf{r})$ der Bloch-Funktionen des ν -ten Bandes; $-\mathfrak{F}$ ist die Feldstärke des äußeren elektrischen Feldes. Zu integrieren ist in (2) über eine Elementarzelle des Kristalls.

Die Anwendbarkeit der Diracschen Störungsrechnung auf dieses Gleichungssystem wird im folgenden untersucht, denn eine rohe Abschätzung der zweiten Näherung ergibt nicht, daß sie von geringer Bedeutung gegenüber der ersten Näherung ist. Die Übergangswahrscheinlichkeit wird daher auf andere Weise berechnet und das Ergebnis mit dem der ersten Näherung verglichen.

Die Berechnung wird folgenden Einschränkungen unterworfen:

1. Das Gleichungssystem (1) wird nur soweit benutzt, als es die Koeffizienten a_1 und a_2 des Valenz- bzw. Leitungsbandes direkt betrifft; d.h., alle anderen a_ν werden, wie auch im Fall der Störungsrechnung, identisch Null gesetzt*.

2. Es wird nur der Fall eines eindimensionalen Gitters in Richtung des äußeren Feldes betrachtet. Das ist keine sehr wesentliche Einschränkung, denn es werden später nur Werte in der Nähe einer Bandlücke und nur grobe quantitative Annahmen über die Art der auftretenden Funktionen in dieser Umgebung benutzt; so können in die Rechnung ohnehin keine spezifischen Eigenschaften des mehrdimensionalen Falles eingehen. Allerdings werden analytische Eigenschaften der Funktionen $E_\nu(\mathbf{k})$, $\gamma_{\nu\mu}(\mathbf{k})$ benutzt, die sich nur im eindimensionalen Falle leicht beweisen lassen. Im dreidimensionalen Falle erfolgt die Bewegung im \mathbf{k} -Raum längs einer Linie in der Richtung \mathfrak{F} , es ist plausibel, daß die benutzten analytischen Eigenschaften im allgemeinen auch für diesen Fall gelten, wenn k jetzt als eindimensionaler Parameter längs dieser Linie aufgefaßt wird; für sehr spezielle Fälle ist ein komplizierteres analytisches Verhalten denkbar.

Man erhält so, mit der eindimensionalen Variablen k statt $\mathbf{k} + F\mathbf{t}$:

$$\left. \begin{aligned} i a'_1(k) &= \gamma_{12}(k) e^{\frac{1}{i} \int (\gamma_{22}(k) - \gamma_{11}(k)) dk} e^{\frac{1}{i} \int (E_2(k) - E_1(k)) \frac{dk}{F}} a_2(k) \\ i a'_2(k) &= \gamma_{12}^*(k) e^{\frac{1}{i} \int (\gamma_{11}(k) - \gamma_{22}(k)) dk} e^{\frac{1}{i} \int (E_1(k) - E_2(k)) \frac{dk}{F}} a_1(k) \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

Dabei ist zu beachten, daß die Funktionen $\gamma_{\nu\mu}(k)$ nicht eindeutig gegeben sind: die Funktionen $u_\nu(k, x)$, $\psi_\nu(k, x)$ sind ja durch die Schrödinger-Gleichung nur bis auf einen Phasenfaktor festgelegt, der von k

* Über den (geringen) Einfluß der übrigen Bänder auf den betrachteten Übergang: KANE, E.O.: J. Phys. Chem. Solids **12**, 181 (1960).

abhängen darf. Wie aber schon KELDYSH¹ bemerkt hat, ist

$$\gamma_{12}(k) e^{i \int_{(E_2(k)-E_1(k))}^k dk} \quad (4)$$

von diesem Phasenfaktor unabhängig: die Ersetzung

$$e^{i\Phi_\nu(k)} u_\nu(k, x) \rightarrow u_\nu(k, x)$$

bewirkt gemäß (2):

$$e^{i(\Phi_\mu(k) - \Phi_\nu(k))} \gamma_{\nu\mu}(k) \rightarrow \gamma_{\nu\mu}(k), \quad (\nu \neq \mu); \quad \frac{d}{dk} \Phi_\nu(k) + \gamma_{\nu\nu}(k) \rightarrow \gamma_{\nu\nu}(k),$$

(4) geht dabei also in sich selbst über. Man kann die Funktionen $\gamma_{\nu\nu}(k)$ daher auch identisch zum Verschwinden bringen, indem man durch die Ersetzung

$$e^{i \int_{\gamma_{\nu\nu}(k)}^k dk} u_\nu(k, x) \rightarrow u_\nu(k, x)$$

$u_\nu(k, x)$ bis auf einen nun für alle k eines Bandes einheitlichen Phasenfaktor festlegt. Mit der Normierung der $u_\nu(k, x)$ ist das verträglich: die $\gamma_{\nu\nu}(k)$ sind reell, wie durch Differenzieren der Normierungsbedingung der $u_\nu(k, x)$ folgt. Allerdings sind die so festgelegten Funktionen $\psi_\nu(k, x)$ im allgemeinen im k -Raum nicht mehr periodisch; für diese Untersuchung ist das aber unwesentlich. Für (4) wird im folgenden die Abkürzung $\gamma(k)$ benutzt.

2. Die Störungsrechnung in erster und höherer Näherung

Die Anwendung der Diracschen Störungsrechnung auf (3) besteht darin, $a_1(k)$ in erster Näherung konstant gleich eins zu setzen, damit ergibt sich:

$$a_2(k) = \frac{1}{i} \int_{\gamma^*(k)}^k e^{i \int_{(E_1(k)-E_2(k))}^k \frac{dk}{F}} dk. \quad (5)$$

Zur Deutung dieses Integrals kann man Folgendes bemerken: Die Feldstärke F , die in isolierenden Kristallen erreicht werden kann, ist in atomaren Einheiten sehr klein; für k -Werte, die nicht in der Nähe eines Minimums k_m von $E_2(k) - E_1(k)$ liegen, oszilliert also der Phasenfaktor im Integranden (5) sehr rasch. Das Integral (5) als Funktion der oberen Grenze kann daher gemäß

$$a_2(k) = \frac{\kappa(k) F \gamma^*(k)}{E_2(k) - E_1(k)} e^{i \int_{(E_1(k)-E_2(k))}^k \frac{dk}{F}} + \omega(k) \quad (6)$$

zerlegt werden in einen Teil, der mit langsam veränderlicher Amplitude um Null schnell oszilliert [$\kappa(k)$ ist langsam veränderlich und von der Größenordnung 1] und einen Teil, $\omega(k)$, der langsam veränderlich ist und den Mittelpunkt der Oszillation von $a_2(k)$ angibt. Der erste Anteil

stellt eine Beimischung von Funktionen des Leitungsbandes zu denen des Valenzbandes dar, die, wie sich zeigen läßt, als Polarisation der Ladungsverteilung im Valenzband aufgefaßt werden muß. Der Anteil $\omega(k)$, der eine Aufenthaltswahrscheinlichkeit im Leitungsband darstellt, verändert sich dem Betrage nach nur bei k -Werten in der Nähe von k_m merklich. Bei einer Bandlücke, die in atomaren Einheiten vergleichbar wäre mit F , würde als Ausdruck der quantenmechanischen Unschärfe zwischen Ort und Energie sogar die Zerlegung (6) nicht mehr ohne Willkür möglich und damit die Bandzugehörigkeit des Elektrons nicht mehr eindeutig erkennbar sein. Je mehr aber mit wachsendem $|k - k_m|$ die Differenz $E_2(k) - E_1(k)$ groß wird gegen F , desto weniger verändert sich $\omega(k)$, desto besser stellt also der erste Summand in (6) den Wert des unbestimmten Integrals dar und desto deutlicher ist die Trennung der beiden Anteile ohne Willkür möglich. Zur Berechnung des Bandübergangs mit (3) ist also als Anfangsbedingung für $k \ll k_m$ anzusetzen: $a_1 = 1$, $\omega(k) = 0$. Der konstante Wert $\omega(k) \neq 0$ für $k \gg k_m$ beschreibt dann einen Anteil der Wellenfunktion, der einem Elektron im Leitungsband entspricht. Diese Zunahme $\Delta\omega(k)$ des Integrals (5) beim Durchgang durch ein Minimum k_m von $E_2(k) - E_1(k)$ ist von den genannten Autoren¹ durch Verbiegung des Integrationsweges über einen in der Nähe von k_m in der komplexen k -Ebene gelegenen Sattelpunkt k_s der Funktion $\exp \frac{1}{i} \int_1^k (E_1(k) - E_2(k)) \frac{dk}{F}$ ausgerechnet worden. Dabei werden noch genauer anzugebende Annahmen über die k -Abhängigkeit der auftretenden Funktionen in der Nähe von k_m und k_s gemacht; insbesondere ist von Bedeutung, daß $\gamma(k)$ in k_s einen einfachen Pol hat.

Es ist aber fraglich, ob die Betrachtung der ersten Näherung dieser Störungsrechnung ausreichend ist. Faßt man (5) als ersten Schritt eines (übrigens konvergenten) Iterationsverfahrens zur Lösung von (3) auf, so erhält man, einen Schritt weitergehend:

$$a_2(k) = \frac{1}{i} \int_1^k \gamma^*(k) e^{\frac{1}{i} \int_1^k \dots} dk \quad (7, I)$$

$$- \frac{1}{i} \int_1^k \gamma^*(k_1) e^{\frac{1}{i} \int_1^{k_1} \dots} dk_1 \int_{k_1}^k \gamma(k_2) e^{\frac{1}{i} \int_{k_1}^{k_2} \dots} dk_2 \int_{k_2}^k \gamma^*(k_3) e^{\frac{1}{i} \int_{k_2}^{k_3} \dots} dk_3 \quad (7, II)$$

Es ist nun durchaus nicht ohne weiteres zu sehen, ob der Anteil (7, II) weniger zum Bandübergang beiträgt, als der Anteil (7, I). Für eine erste Abschätzung von (7, II) genügt es, den *ersten* Summanden von (6) für das innerste Integral zu benutzen, der Summand $\omega(k)$ ist in der Nähe von k_s sehr viel kleiner. Damit ist der Integrand des mittleren Integrals durch

$$F \cdot |\gamma(k)|^2 \frac{\kappa(k)}{E_2(k) - E_1(k)} \quad (8)$$

gegeben, das äußere Integral hat also eine ähnliche Struktur wie das Integral (5). Der Zuwachs $\Delta\omega(k)$, den Integrale dieser Art beim Durchgang durch k_m erfahren, wird für kleine F näherungsweise durch einen Ausdruck

$$\Delta\omega(k) = K_1 F^{1-\alpha} e^{-\frac{K_2}{F}}$$

wiedergegeben, wie sich an vielen Beispielen belegen läßt. K_1 und K_2 sind dabei von F unabhängige Konstanten, $e^{-\frac{K_2}{F}}$ ist der Betrag des Exponentialfaktors, $\left| \exp \frac{1}{i} \int_k \dots \right|$, im Sattelpunkt k_s und α hängt vom analytischen Verhalten des übrigen Integranden bei k_s ab; α wird um so größer, je stärker dieser dort singulär wird.

Im Falle des Anteils (7, I), wo $\gamma(k)$ einen Pol erster Ordnung in k_s hat, wird gerade $1-\alpha=0$. Der Integrand des äußeren Integrals (7, II) ist aber offenbar bei k_s stärker singulär, es ist also ein größeres α zu erwarten; dadurch kann der zusätzliche Faktor F aus der Abschätzung (8) kompensiert oder gar überkompensiert werden. Entsprechendes gilt für die höheren Näherungen.

Die Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeit mittels des Integrals (5) bedarf also einer Rechtfertigung durch genauere Abschätzung der höheren Näherungen, wenn nicht sogar einer Ergänzung. Dabei ist zu beachten, daß die Aufteilung des Vorganges in verschiedene Näherungen eine künstliche ist, die nicht in der Natur der Sache liegt; die Beiträge höherer Näherungen sind also nicht etwa als Rückwirkungen des schon ins Leitungsband übergegangenen Elektrons aufzufassen, die wegen der dort wirksamen Stöße nicht mehr betrachtet werden dürften. Solange kein Stoß stattgefunden hat, entwickelt sich die Wellenfunktion des Elektrons gemäß der vollständigen Lösung der Gln. (4), nachdem ein Stoß stattgefunden hat, ist dagegen die erste Näherung einer Störungsrechnung ebensowenig weiterhin gültig wie die höheren. Die hier durchgeführte Berechnung ist also überhaupt nur dann sinnvoll, wenn die Elektron-Phonon-Wechselwirkung während des Vorganges vernachlässigt werden darf. Dieses Problem bedürfte allerdings einer gesonderten Untersuchung.

3. Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeit

Zur Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeit müssen für $E(k)$, $\gamma(k)$ Funktionen eingesetzt werden, die in der Umgebung von k_m (welches ohne Beschränkung der Allgemeinheit gleich Null angenommen werden darf) das richtige analytische Verhalten haben. $E_1(k)$, $E_2(k)$ sind Zweige derselben analytischen Funktion mit Verzweigungspunkten symmetrisch zur reellen k -Achse in der Nähe der Minima von $E_2(k) - E_1(k)$; dieses sind die schon erwähnten Sattelpunkte des Exponentialfaktors. $\gamma(k)$ hat dort einen einfachen Pol, wie KELDYSH¹ gezeigt hat. Bei nicht zu breiten Bandlücken ist damit der analytische

Verlauf dieser Funktionen weitgehend bestimmt; bis auf Faktoren, die in der Umgebung von k_m nur langsam veränderlich sind, gilt dort:

$$E_2(k) - E_1(k) = J \int \left(1 + \frac{2}{Jm^*} k^2 \right); \quad \gamma(k) - \gamma^*(k) = \frac{q}{2Jm^*} \frac{1}{1 + \frac{2}{Jm^*} k^2}, \quad (9)$$

wobei m^* das harmonische Mittel der effektiven Massen in den beiden Bändern,

$$\frac{d^2}{dk^2} (E_2(k) - E_1(k)) = \frac{1}{m_2^*} + \frac{1}{|m_1^*|} = \frac{2}{m^*},$$

und J die Breite der Energielücke angibt:

$$J = \{E_2(k) - E_1(k)\}_{k=0}.$$

$\gamma(k)$ hat hiermit an den Verzweigungspunkten $k_s = \pm i \sqrt{Jm^*/2}$ von $E(k) = \pm J \sqrt{1 + \frac{2}{Jm^*} k^2}$ einfache Pole mit den Residuen $\pm i \frac{q}{4}$. Später wird gezeigt, daß q gleich eins zu setzen ist; es soll aber als Parameter mitgenommen werden, um aus dem Endergebnis der Rechnung auf einfache Weise die Anteile der verschiedenen Schritte des Iterationsverfahrens ablesen zu können.

In (3) gehen damit nur die dimensionsbehafteten Konstanten Jm^* und $\frac{J}{F}$, genauer $\frac{Jm^*}{\hbar^2}$ und $\frac{J}{eF}$ ein; aus ihnen läßt sich die dimensionslose Größe (mit einem für spätere Zwecke geeignet gewählten Zahlenfaktor):

$$p = \frac{1}{8} \frac{m^{*\frac{1}{2}} J^{\frac{3}{2}}}{\hbar e F} = (\text{in at. Einheiten}) \frac{1}{8} \frac{m^{*\frac{1}{2}} J^{\frac{3}{2}}}{F}$$

bilden. Es ist also eine Übergangswahrscheinlichkeit als Funktion von p und q zu berechnen. Mit $u = 2 \sqrt{\frac{2}{Jm^*}} k$ erhält man nun für (3):

$$\left. \begin{aligned} i a_1'(u) &= a_2(u) \frac{q}{4+u^2} \exp \frac{2p}{i} \int_0^u \sqrt{4+u^2} du \\ i a_2'(u) &= a_1(u) \frac{q}{4+u^2} \exp - \frac{2p}{i} \int_0^u \sqrt{4+u^2} du. \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

Die Koeffizienten dieses Gleichungssystems verhalten sich nun für große u wesentlich anders als die des Systems (3), die ja in k periodisch sind. Das hat den Vorteil, daß die Polarisationsanteile in der Funktion $a_2(u)$ [sie entsprechen dem ersten Summanden in (6)] für $|u| \rightarrow \infty$ verschwinden; man braucht sie also nicht erst abzutrennen, wenn man die Lösung von (10) für $|u| \rightarrow \infty$ betrachtet. Einen Einfluß auf die Größe

des Bandübergangs kann diese Verschiedenheit dann nicht haben, wenn die Bandlücke sehr viel schmaler ist als die Bänder; der Übergang wird dann in der Hauptsache bei der Bewegungsumkehr des Elektrons am Bandrand stattfinden. Für den weniger interessanten Fall breiter Lücken und schmaler Bänder ist die Idealisierung (9) natürlich nicht mehr brauchbar; für diesen Fall ist auch von FEUER² eine Übergangswahrscheinlichkeit berechnet worden, die von der hier berechneten abweicht.

Die Aufgabe ist nun, für die Lösung von (10) mit den Anfangsbedingungen $a_1(-\infty)=1$, $a_2(-\infty)=0$ den Wert $a_2(+\infty)$ als Funktion von p und q zu bestimmen; $|a_2(+\infty)|^2$ ist dann direkt die Wahrscheinlichkeit des Bandübergangs bei einmaligem Durchlaufen von k_m . Dazu

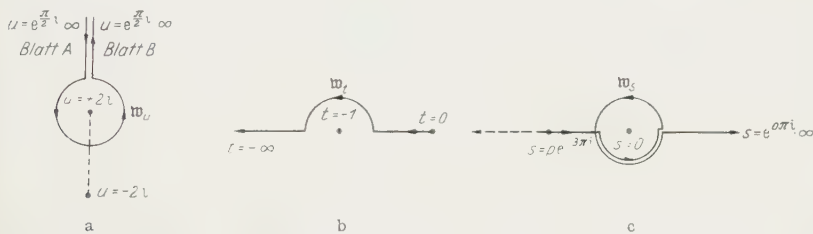


Fig. 1 a-c. Der Integrationsweg in den verschiedenen Variablen

kann, nach dem im Anhang gegebenen Beweis, die Aufgabe folgendermaßen umformuliert werden:

Das Gleichungssystem (10) hat eine Lösung, die im Grenzfall $|u| \rightarrow \infty$ längs der linken Hälfte des Weges w_u der Fig. 1a gegen die Anfangswerte $a_1=1$, $a_2=0$ strebt. Gesucht ist der Grenzwert von $a_2(u)$ für $|u| \rightarrow \infty$ längs der rechten Hälfte des Weges w_u ; die Übergangswahrscheinlichkeit ist damit durch $|a_2|^2$ gegeben. Die weitere Rechnung führt jetzt schnell zum Ziel.

Durch die Substitution

$$u = \sqrt{t} - \frac{1}{\sqrt{t}}, \quad du = \frac{dt}{2t} \left(\sqrt{t} + \frac{1}{\sqrt{t}} \right), \quad \sqrt{4 + u^2} = \sqrt{t} + \frac{1}{\sqrt{t}}$$

wird aus (10):

$$i a_1'(t) = a_2(t) \frac{q}{2\sqrt{t}(t+1)} \exp \frac{p}{i} \left(t - \frac{1}{t} + 2 \ln t \right)$$

$$i a_2'(t) = a_1(t) \frac{q}{2\sqrt{t}(t+1)} \exp - \frac{p}{i} \left(t - \frac{1}{t} + 2 \ln t \right).$$

w_u geht dabei über in w_t der Fig. 1b.

² FEUER, P.: Phys. Rev. **88**, 92 (1952).

Es wird die weitere Substitution $t = e^{i\pi} \left(1 + \left(\frac{3s}{p}\right)^{\frac{1}{3}}\right)$ ausgeführt. Die Potenzentwicklung des Exponenten nach s ergibt:

$$p \left(t - \frac{1}{t} + 2 \ln t \right) = 2\pi i p - s \sum_0^{\infty} (-1)^{\nu} \left\{ 3 - \frac{6}{3+\nu} \right\} \left(\frac{3s}{p} \right)^{\nu/3},$$

also

$$\left. \begin{aligned} i a_1'(s) &= \tilde{a}_2(s) \frac{q}{6i} \frac{1}{s \sqrt{1 + \left(\frac{3s}{p}\right)^{\frac{1}{3}}}} \exp i s \sum_0^{\infty} (-1)^{\nu} \left\{ 3 - \frac{6}{3+\nu} \right\} \left(\frac{3s}{p} \right)^{\nu/3} \\ i \tilde{a}_2'(s) &= a_1(s) \frac{q}{6i} \frac{1}{s \sqrt{1 + \left(\frac{3s}{p}\right)^{\frac{1}{3}}}} \exp -i s \sum_0^{\infty} (-1)^{\nu} \left\{ 3 - \frac{6}{3+\nu} \right\} \left(\frac{3s}{p} \right)^{\nu/3} \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

Dabei ist die Größe $\tilde{a}_2(s)$ gemäß $a_2(s) = \tilde{a}_2(s) \exp -2\pi p$ eingeführt worden. Den Weg w_t wird abgebildet auf w_s , Fig. 1c. In den Gln. (11) und dem Weg w_s kann jetzt der Grenzübergang $p \rightarrow \infty$ vollzogen werden, man erhält

$$\left. \begin{aligned} i a_1'(s) &= \tilde{a}_2(s) \frac{q}{6is} e^{is} \\ i \tilde{a}_2'(s) &= a_1(s) \frac{q}{6is} e^{-is} \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

wobei der linke Endpunkt von w_s , Fig. 1c, ins Unendliche rückt. Der Grenzübergang bedeutet, daß in der Übergangswahrscheinlichkeit $|a_2(+\infty)|^2$ nur die p -Abhängigkeit des wesentlichen Faktors $e^{-4\pi p}$ mitgenommen wird, während in dem verbleibenden Faktor $|\tilde{a}_2(p=\infty, s=\infty) + R(1/p)|^2$ der mit wachsendem p gegen Null gehende Rest vernachlässigt wird.

Es müßte nun gezeigt werden, daß der Grenzübergang $p \rightarrow \infty$ in (11) und w_s erlaubt ist, daß also die a_1, a_2 als Funktionen von p für $p \rightarrow \infty$ wirklich gegen die betrachtete Lösung von (12) streben, und zwar für alle s auf w_s einschließlich $\pm \infty$. Die Schwierigkeit dieses Beweises, auf dessen Wiedergabe verzichtet sei, besteht nur darin, daß w_s nicht endlich ist; andernfalls würde die Behauptung schon aus bekannten Sätzen der Theorie der Differentialgleichungen folgen (KAMKE³).

Aus (12) kann man nun $a_1(s)$ eliminieren:

$$\tilde{a}_2''(s) + \left\{ \frac{1}{s} + i \right\} \tilde{a}_2'(s) - \frac{q^2}{36s^2} \tilde{a}_2(s) = 0.$$

Diese Gleichung wird gelöst durch die Funktionen:

$$\tilde{a}_2(s) = \frac{q}{6} \left(e^{\frac{2}{3}\pi i} \cdot s \right)^{-\frac{1}{2}} \exp -\frac{1}{2} \left(e^{\frac{2}{3}\pi i} s \right) \left\{ \begin{aligned} &W_{-\frac{1}{2}, \frac{q}{6}} \left(e^{\frac{2}{3}\pi i} s \right) \\ &W_{+\frac{1}{2}, \frac{q}{6}} \left(e^{\frac{2}{3}\pi i} s \right), \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

mit den Whittakerschen Funktionen $W_{\kappa, \mu}(s)$, die der Differentialgleichung

$$W_{\kappa, \mu}''(s) + \left\{ -\frac{1}{4} + \frac{\kappa}{s} + \frac{\frac{1}{4} - \mu^2}{s^2} \right\} W_{\kappa, \mu}(s) = 0$$

³ KAMKE, E.: Differentialgleichungen reeller Funktionen, S. 142ff. Leipzig 1930.

genügen. Die Anfangsbedingungen sind

$$\tilde{a}_2(s) \rightarrow 0, \quad -\frac{6s}{q} e^{is} \tilde{a}_2'(s) \rightarrow 1$$

für $|s| \rightarrow \infty$ auf dem Halbstrahl $\arg s = -3\pi$ gemäß Fig. 1c. Das dafür in Frage kommende asymptotische Verhalten der Whittaker-Funktionen ist (BUCHHOLZ⁴, S. 91, Formel 1b):

$$W_{\pm \frac{1}{2}, \frac{q}{6}}(s) \approx s^{\pm \frac{1}{2}} e^{-\frac{s}{2}} \left(1 + R\left(\frac{1}{s}\right) \right), \quad |\arg s| < \frac{3}{2}\pi. \quad (14)$$

Damit folgt, daß die Lösung (13) mit $W_{-\frac{1}{2}, \frac{q}{6}}$ gerade die Anfangsbedingungen erfüllt. Der Wert dieser Lösung für $|s| \rightarrow \infty$ auf dem Halbstrahl $\arg s = 0$ ergibt sich aus den „Umlaufrelationen“ der Whittaker-Funktionen (nach BUCHHOLZ⁴, S. 27, Formel 38a):

$$W_{-\frac{1}{2}, \frac{q}{6}}(e^{\frac{5}{2}i\pi} \cdot s) = -\frac{12 \sin \frac{\pi}{6} q}{q} W_{\frac{1}{2}, \frac{q}{6}}(e^{-\frac{1}{2}i\pi} \cdot s) + f(q) W_{-\frac{1}{2}, \frac{q}{6}}(e^{\frac{1}{2}i\pi} \cdot s).$$

Durch nochmalige Anwendung der asymptotischen Formel (14) wird damit:

$$\lim_{s \rightarrow \infty} \tilde{a}_2(s) = 2i \sin \frac{\pi}{6} q.$$

Als Wert von $a_2(+\infty)$ ergibt sich damit im Grenzfall großer p :

$$a_2(+\infty) = 2i \sin \frac{\pi}{6} q \cdot \exp(-2\pi p). \quad (15)$$

Zum Vergleich des Resultats (15) mit den Größen $a_2(+\infty)$, die man durch Anwendung der Störungsrechnung auf das Gleichungssystem (10) erhält, kann man benutzen, daß die Iteration von (10) die Funktionen $a(u)$ gerade als Potenzreihen von q ergibt; die Taylor-Reihe von (15) läßt also die Beiträge der verschiedenen Näherungen unmittelbar erkennen.

Die erste Näherung, mittels des Integrals (5), ergibt also

$$a_2(+\infty) = \frac{i\pi}{3} q \exp(-2\pi p),$$

dieses entspricht genau dem Ergebnis von FRANZ¹, letztes Zitat.

Man sieht, wie die Güte der ersten Näherung von q abhängt, es ist daher notwendig, q genau zu bestimmen. Mit dem unter 4. bewiesenen Wert $q=1$ ergibt sich die Übergangswahrscheinlichkeit

$$|a_2(+\infty)|^2 = \exp(-4\pi p) = \exp\left(-\frac{\pi}{4} \frac{(2m^*)^{\frac{1}{2}} J^{\frac{3}{2}}}{\hbar e F}\right). \quad (16)$$

Für diesen q -Wert ist das Ergebnis der ersten Näherung noch wenig verschieden, es ist nur um den Faktor $(\pi/3)^2$ größer.

⁴ BUCHHOLZ, H.: Die konfluente hypergeometrische Funktion. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1953.

4. Bestimmung des Residuums

Die Bloch-Funktionen $\psi_n(k, x)$ werden in ihrer Eigenschaft als mehrblättrige Funktionen auf der komplexen E -Ebene betrachtet. An der Stelle $E_s = E(k_s)$, dem Energiewert, an dem die Funktionen $E_1(k)$, $E_2(k)$ als verschiedene Zweige einer mehrblättrigen analytischen Funktion von k zusammenhängen, steht die Normierungsbedingung zu der Orthogonalität der Funktionen verschiedener Bänder in Widerspruch. Es werden deshalb unnormierte Funktionen $\psi(E, x) = e^{ik(E)x} u(E, x)$ betrachtet, die in E_s als Funktionen von E holomorph sind. Mit der Entwicklung

$$u(E, x) = u_0(x) + (E - E_s) u_1(x) + \dots$$

gilt dann

$$[u_0^*(x), u_0(x)] = 0, \quad \frac{\alpha}{2} = [u_0^*(x), u_1(x)] = [u_1^*(x), u_0(x)], \quad (17)$$

wobei der Klammerausdruck $[u^*(x), u(x)]$ eine Abkürzung für das Integral von $u^*(x) \cdot u(x)$ über eine Elementarzelle des Ortsraumes x ist. Mit dieser Überlegung hat KELDYSH¹ gezeigt, daß $\gamma_{12}(k)$ an der Stelle $k_s = k(E_s)$ einen einfachen Pol mit dem Residuum $\pm \frac{i}{4}$ hat, $\gamma_{11}(k)$ und $\gamma_{22}(k)$ und damit $\exp \frac{1}{i} \int_{k_s}^k (\gamma_{22}(k) - \gamma_{11}(k)) dk$ blieben dabei aber unbekannt. Das Ergebnis von KELDYSH muß daher ergänzt werden; es wird gezeigt, daß dieser Keldysh-Faktor dem Betrage nach exakt gleich eins ist, daß also $\gamma(k)$ ein Residuum vom Betrag $\frac{1}{4}$ hat. Letzteres wird bestimmt durch Konstruktion normierter Funktionen $\tilde{\psi}(E, x) = e^{ik(E)x} \tilde{u}(E, x)$ für welche die $\gamma_{\nu\nu}(k)$ verschwinden; wie schon gezeigt wurde, ist ja $\gamma(k)$ unabhängig von der Wahl der Phasenfaktoren dieser $\tilde{u}(E, x)$. Bei dem Beweis wird, wie auch bei KELDYSH, vorausgesetzt, daß α nicht verschwindet.

Die $\tilde{u}(E, x)$ sind

$$\tilde{u}(E, x) = u(E, x) \cdot \exp - \int_{E_0}^E \frac{\left[u^*(E^*), \frac{d}{dE} u(E) \right]}{[u^*(E^*), u(E)]} dE, \quad (18)$$

damit ist auch

$$\tilde{u}^*(E^*, x) = u^*(E^*, x) \cdot \exp - \int_{E_0}^E \frac{\left[u(E), \frac{d}{dE} u^*(E^*) \right]}{[u^*(E^*), u(E)]} dE.$$

Hieraus folgt

$$i\gamma_{\nu\nu}(k) = \left[\tilde{u}^*(k^*(E^*)), \frac{d}{dk} \tilde{u}(k(E)) \right] = \frac{dE}{dk} \left[\tilde{u}^*(E^*), \frac{d}{dE} \tilde{u}(E) \right] = 0$$

und

$$\frac{d}{dE} [\tilde{u}^*(E^*), \tilde{u}(E)] = 0, \quad [\tilde{u}^*(E^*), \tilde{u}(E)] = 1$$

durch geeignete Festlegung einer in $u(E, x)$ freien Konstanten. Weiter gilt wegen (17) in der Umgebung von E_s :

$$\int_{E_0}^E \frac{\left[u^*(E^*), \frac{d}{dE} u(E) \right]}{[u^*(E^*), u(E)]} dE \approx -\frac{1}{2} \ln(E - E_s) + c_0,$$

$$\exp - \int_{E_0}^E \frac{\left[u^*(E^*), \frac{d}{dE} u(E) \right]}{u^*(E^*), u(E)} dE \approx e^{c_0} (E - E_s)^{-\frac{1}{2}}$$

und damit schließlich

$$[\tilde{u}^*(E^*), \tilde{u}(E)] \approx \alpha |e^{c_0}|^2, \quad \alpha |e^{c_0}|^2 = 1.$$

Es gelten die weiteren Beziehungen

$$k - k_s \approx c(E - E_s)^2 \quad \text{und} \quad E_1 - E_s \approx E_s - E_2,$$

wenn man mit E_1 und E_2 E -Werte bezeichnet, die auf den Zweigen $E_1(k)$ und $E_2(k)$ der Funktion $E(k)$ zum gleichen k gehören. So erhält man

$$\left. \begin{aligned} i\gamma(k) &\approx \frac{e^{c_0^*}}{\sqrt{E_2 - E_s}} \frac{e^{c_0}}{\sqrt{E_1 - E_s}} \left[u^*(E_1^*), \frac{d}{dE} u(E_2) \right] \frac{dE_2}{dk} \\ &\approx \frac{\pm i}{2(E_2 - E_s)} \frac{dE_2}{dk} \approx \frac{\pm i}{4(k - k_s)}. \end{aligned} \right\} \quad (19)$$

Damit ist die Behauptung bewiesen.

Das doppelte Vorzeichen in (19) kommt daher, daß man wegen der Doppeldeutigkeit des Normierungsfaktors in der Nähe von E_s die Wahl hat, welche Fortsetzung ins andere Band man als $\tilde{u}(E_2, x)$ ansehen will; man kann auch $\tilde{u}(E_2, x)$ noch mit einem willkürlichen konstanten Phasenfaktor versehen, der dann im Residuum ebenfalls auftritt. Schließt man Integrationswege um einen Punkt E_s herum aus, z. B. wenn man nur die Funktionen $\tilde{u}_v(E, x)$ zu den reellen E -Werten eines Bandes betrachtet, so braucht trotzdem die Definition (18) der $\tilde{u}(E, x)$ noch nicht eindeutig zu sein; bei Integration längs eines geschlossenen Weges auf der Riemannschen E -Fläche, der zwei Verzweigungspunkte im Innern enthält, braucht der Exponent in (18) nicht zu verschwinden. Längs einer solchen Kurve ändert sich aber auch $k(E)$ um eine Periode des reziproken Gitters; wenn also das Integral über diese Kurve nicht modulo $2\pi i$ verschwindet, ist $\tilde{\psi}(k(E), x) = e^{i\kappa(E)x} \tilde{u}(k(E), x)$ nicht periodisch in k .

II. Näherung von freien Elektronen her

1. Einleitung

Nach der Gestalt der Gl. (11) des Abschnittes I ist für die Größe $a_2(p, s = \infty)$ als Funktion von p eine asymptotische Entwicklung

$$a_2(p, s = +\infty) = \exp(-2\pi p) \cdot \left\{ 1 + \frac{c_1}{p^{\frac{1}{3}}} + \frac{c_2}{p^{\frac{2}{3}}} + \dots \right\} \quad (20)$$

für große p zu erwarten; für den Ausdruck (16) wurde nur das erste Glied von (20) benutzt. Die Grenze für p , bei welcher der durch den

Bandübergang entstehende Strom einen Isolator zerstören würde, liegt in der Gegend von $p=10$, jedenfalls ist der ganze Vorgang nur für $p < 100$ interessant, so daß $p^{\frac{1}{2}}$ zwischen zwei und vier liegt. Die Vernachlässigung der höheren Glieder kann also einen Zahlenfaktor der Größenordnung eins ausmachen. Es ist darum günstig, daß man, von freien Elektronen, dem anderen Extrem, ausgehend, eine Übergangswahrscheinlichkeit für beliebig *kleine* Werte von p erhält, die mit (16) übereinstimmt (soweit man die auftretenden Konstanten vergleichen kann). Eine solche Rechnung ist bereits von SAUTER und WEISSE⁵ durchgeführt worden, doch ist sie, durch Benutzung der Diracschen Störungsrechnung, auf den Grenzfall einer Übergangswahrscheinlichkeit nahe bei eins beschränkt. Auf ähnliche Weise wie in Abschnitt I läßt sich auch hier die Diracsche Störungsrechnung in der Zweibandnäherung umgehen und der Gültigkeitsbereich der erhaltenen Formel auf kleine Übergangswahrscheinlichkeiten erweitern.

Die Schrödinger-Gleichung des Elektrons im homogenen elektrischen Feld (wieder mit den Einheiten $\hbar=e=m=1$):

$$\left\{ -\frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} - Fx - i \frac{\partial}{\partial t} \right\} \varphi(x, t) = 0$$

hat Lösungen

$$\varphi_k(x, t) = e^{i(k+Ft)x} e^{\frac{1}{i} \int_0^t \frac{1}{2}(k+Ft)^2 dt}, \quad (21)$$

sie entsprechen Elektronen mit vollständig unbestimmtem Ort aber definiertem Impuls, welcher im Sinne konstanter Beschleunigung zunimmt. $\frac{1}{2}(k+Ft)^2$ ist die jederzeit ebenfalls scharf bestimmte kinetische Energie.

Diese Funktionen entsprechen den im Abschnitt I benutzten Funktionen (Houston-Funktionen):

$$\psi_n(k+Ft, x) e^{\frac{1}{i} \int_0^t E_n(k+Ft) dt} \quad (22)$$

im Falle verschwindenden Gitters. Ein wichtiger Unterschied besteht jedoch darin, daß nach Durchlaufen einer Zeit $\Delta t = b/F$ (b = Periode des reziproken Gitters) die Funktionen (22) bis auf einen Phasenfaktor in sich selbst übergehen, während die Funktionen (21) in solche übergehen, die bei vorhandenem Gitter dem nächsthöheren oder -niedrigeren Energieband entsprechen würden.

Während also bei einer Berechnung des Bandübergangs mit Funktionen (22) ein Elektron, welches nach einiger Zeit noch durch die anfängliche Funktion $\psi_n(k+Ft, x)$ beschrieben wird, gerade *nicht* in andere Bänder übergegangen ist, beschreibt (21) Elektronen, die vollständig ins andere Band übergehen.

⁵ SAUTER, F., u. J. WEISSE: Z. Physik **140**, 150 (1955).

Zur Behandlung der Schrödinger-Gleichung mit Feld und dem einfachen Gitter

$$V(x) = W e^{i b x} + W^* e^{-i b x}$$

wird jetzt der Ansatz

$$\varphi(x, t) = \sum_{-\infty}^{+\infty} c_n(t) e^{i(k+n b+F t)x} e^{\frac{1}{i} \int_{-\infty}^t \frac{1}{2}(k+n b+F t)^2 dt}$$

gemacht; man erhält damit das Gleichungssystem:

$$i \dot{c}_n(t) = W c_{n-1}(t) \exp -\frac{b}{2i} \{F t^2 + (2k + 2n b - b) t\} \\ + W^* c_{n+1}(t) \exp +\frac{b}{2i} \{F t^2 + (2k + 2n b + b) t\}.$$

Zur Deutung des Systems betrachte man eine Lösung mit $c_0 = 1$, $c_{n \neq 0} = 0$ für große negative t (bei zweckmäßiger Festlegung des Zeitnullpunktes durch $k = -\frac{1}{2}b$). In gewisser Analogie zu (5) und (6) kann man schreiben:

$$c_1(t) \approx \int_{-\infty}^t \frac{W}{i} c_0(t) e^{-\frac{b}{2i} F t^2} dt \approx W c_0(t) \frac{e^{-\frac{b}{2i} F t^2}}{b F t} + \omega(t) \quad (23)$$

mit der langsam veränderlichen Funktion $\omega(t)$. Für solche t , bei denen der Abstand $b F t = \frac{1}{2}(F t + \frac{1}{2}b)^2 - \frac{1}{2}(F t - \frac{1}{2}b)^2$ der kinetischen Energien eines c_1 - und eines c_0 -Elektrons groß ist, stellt der erste Summand in (23) eine gute Näherung für $c_1(t)$ dar, $\omega(t)$ ist also konstant. Dieser erste Summand bedeutet wieder eine Veränderung der Ladungsverteilung gegenüber der des freien Elektrons, hervorgerufen durch das Feld des Gitters; in der Terminologie der Diracschen Störungsrechnung ist er eine Art virtueller c_1 -Zustand über dem vorhandenen c_0 -Zustand.

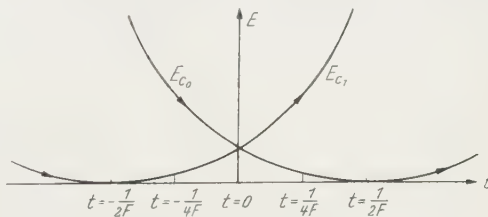


Fig. 2. Parabeln der kinetischen Energie

In der Nähe von $t=0$ nun, dem Schnittpunkt der Energieparabeln der c_0 - und c_1 -Elektronen (Fig. 2), wo deren Impulse $k + F t$ dem Betrage nach gleich sind und den Wert $\pm \frac{1}{2}b$ haben (entsprechend dem Rand der 1. Brillouinschen Zone), ist der Ausdruck (23) nicht mehr zutreffend. Der Phasenfaktor $\exp -\frac{b}{2i} F t^2$ ist stationär in diesem Punkt, d.h., $c_1(t)$ und $c_0(t)$ verändern sich rasch ihrem Betrage nach. Nach Durchlaufen dieses Punktes, wenn (23) wieder eine Näherung darstellt, hat $\omega(t)$ einen von Null verschiedenen Wert, dem entspricht eine Wahrscheinlichkeit, daß das Elektron an der Bandgrenze nicht ins andere Band übergeht, sondern reflektiert wird.

2. Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeit

SAUTER und WEISSE⁵ haben mittels des Integrals (23) die Reflektionswahrscheinlichkeit (für den dreidimensionalen Fall) unter der Voraussetzung $c_0 \approx 1$ (fast vollständiger Bandübergang) direkt ausgerechnet. Diese schwerwiegende Voraussetzung wird im folgenden nicht benutzt, es wird zunächst nur

$$|W| \ll 1$$

verlangt. Dieses ist die Voraussetzung für die Gültigkeit der Brillouinschen Näherung, die besagt, daß im Innern der Bänder die Wellenfunktionen der freien Elektronen und deren Energieeigenwerte eine brauchbare Näherung für die Schrödinger-Gleichung mit Gitter darstellen. Mit $k = -\frac{1}{2}b$ gelten die Gleichungen:

$$i\dot{c}_0(t) = W c_{-1}(t) \exp - \frac{b}{2i} (F t^2 - 2bt) + W^* c_{+1}(t) \exp \frac{b}{2i} F t^2$$

$$i\dot{c}_1(t) = W c_0(t) \exp - \frac{b}{2i} F t^2 + W^* c_2(t) \exp \frac{b}{2i} (F t^2 + 2bt),$$

mit denen die Reflektion $c_0 \rightarrow c_1$ zur Zeit $t=0$ an der Lücke zwischen dem zweitiefsten und tiefsten Energieband berechnet werden soll. Die virtuellen Zustände $c_2(t)$, $c_{-1}(t)$, die für die untersuchte Reflektion in einem Zeitintervall um $t=0$ keine Bedeutung haben, werden vernachlässigt; an dieser Stelle geht die Voraussetzung $|W| \ll 1$ ein, denn wegen

$$\left| \frac{W}{i} \int e^{\pm \frac{b}{2i} (F t^2 \pm 2bt)} dt \right|^2 \approx \frac{|W|^2}{b|F t \pm b|} \ll 1$$

in der Nähe von $t=0$ ist die Vernachlässigung erträglich.

Zu lösen ist somit noch das Gleichungssystem

$$\left. \begin{aligned} i\dot{c}_0(t) &= W^* c_1(t) e^{\frac{b}{2i} F t^2} \\ i\dot{c}_1(t) &= W c_0(t) e^{-\frac{b}{2i} F t^2} \end{aligned} \right\} \quad (24)$$

Durch Eliminieren von $c_0(t)$ und mit $u = \sqrt{bF} t$ und $p = \frac{|W|^2}{bF}$ erhält man:

$$c_1''(u) - i u c_1'(u) + p c_1(u) = 0. \quad (25)$$

Gesucht ist die Lösung von (25) mit den Anfangsbedingungen

$$c_1(u = -\infty) = 0 \quad |c_0(t = -\infty)| = \left| \frac{1}{\sqrt{p}} c_1'(u = -\infty) \right| = 1,$$

nach dem Verhalten dieser Lösung für $u = +\infty$ wird gefragt; der Wert $|c_1(+\infty)|^2$ dieser Lösung gibt die Wahrscheinlichkeit dafür an, daß das Elektron nicht ins untere Band übergeht, sondern an der Bandgrenze reflektiert wird.

Lösungen von (25) sind (mit $\sqrt{p} e^{-\frac{\pi}{4} p}$ als Normierungsfaktor):

$$c_1(u) = \sqrt{p} e^{-\frac{\pi}{4} p} e^{\frac{i}{4} u^2} \begin{cases} D_{\frac{p}{i}} \left(e^{\frac{\pi}{4} i} u \right) \\ D_{1 - \frac{p}{i}} \left(e^{\frac{3}{4} \pi i} u \right), \end{cases}$$

worin die „Funktionen des parabolischen Zylinders“ $D_\mu(z)$ der Differentialgleichung genügen:

$$D_\mu''(z) + \left\{ \mu + \frac{1}{2} - \frac{z^2}{4} \right\} D_\mu(z) = 0.$$

Ihr asymptotisches Verhalten ist (RYSNIK-GRADSTEIN⁶, 7.346):

$$D_\mu(z) \approx z^\mu e^{-\frac{z^2}{4}} \left(1 - \frac{\mu(\mu-1)}{2z^2} + \dots \right), \quad |\arg z| < \frac{3}{4} \pi.$$

Die Lösung mit $D_{-1 - \frac{p}{i}}$ erfüllt also die Anfangsbedingungen ($\arg u = -\pi$). Der Wert von $c_1(+\infty)$ folgt aus (RYSNIK-GRADSTEIN, 7.346):

$$D_\mu(z) \approx z^\mu e^{-\frac{z^2}{4}} \left(1 - \frac{\mu(\mu-1)}{2z^2} + \dots \right) - \frac{\sqrt{2\pi}}{\Gamma(-\mu)} e^{\mu \pi i} z^{-p-1} e^{\frac{z^2}{4}} \left(1 + \frac{(\mu+1)(\mu+2)}{2z^2} + \dots \right)$$

für $\frac{\pi}{4} < \arg z < \frac{5}{4} \pi$. Es ergibt sich damit

$$|c_1(+\infty)| = \sqrt{p} e^{-\frac{\pi}{4} p} \frac{\sqrt{2\pi}}{\left| \Gamma\left(1 + \frac{p}{i}\right) \right|} e^{-\pi p} e^{\frac{3}{4} \pi p} = \sqrt{1 - e^{-2\pi p}},$$

unter Benutzung von

$$\left| \Gamma\left(1 + \frac{p}{i}\right) \right| = p \left| \frac{p}{\pi} \sinh \pi p \right|^{-\frac{1}{2}}.$$

Man erhält somit als Reflektionswahrscheinlichkeit

$$|c_1(+\infty)|^2 = 1 - \exp\left(-2\pi \frac{W^2}{bF}\right)$$

und als Übergangswahrscheinlichkeit

$$|c_0(+\infty)|^2 = 1 - |c_1(+\infty)|^2 = \exp\left(-2\pi \frac{W^2}{bF}\right).$$

3. Erweiterung des Ergebnisses und abschließende Bemerkungen

Das letzte Ergebnis soll nun auf den Fall komplizierterer Potentiale und Reflektionen an höheren Bandlücken übertragen werden. Ist ein Gitterpotential mit dem l -ten Fourier-Koeffizienten $W_l \neq 0$ gegeben,

⁶ RYSNIK, I. M., u. I. S. GRADSTEIN: Σ , II, f -Tafeln, Berlin 1957.

so erhält man mit dem Lösungsansatz ein komplizierteres System von Differentialgleichungen für die $c_\nu(t)$ welches jetzt eine direkte Kopplung zwischen Wellenfunktionen mit einer Impulsdifferenz $\Delta(k + Ft) = lb$ enthält. Wenn die Voraussetzung für die Anwendbarkeit der Brillouinschen Näherung gegeben ist, erscheint die Annahme vernünftig, daß die Reflektion an der l -ten Lücke bei $k + Ft = \pm lb/2$ im wesentlichen durch die direkte Kopplung zwischen einfallender und reflektierter Welle bewirkt wird, während die Wechselwirkung über virtuelle Zwischenzustände vernachlässigt werden kann. Damit erhält man

$$\begin{aligned} i\dot{c}_0(t) &= W_l^* c_l(t) e^{\frac{b}{2i} l F t^2} \\ i\dot{c}_l(t) &= W_l c_0(t) e^{-\frac{b}{2i} l F t^2}, \end{aligned}$$

worin also gegenüber (24) nur bF durch lbF ersetzt ist. Die Übergangswahrscheinlichkeit an der l -ten Lücke ist damit:

$$w_{\text{Übergang}} = \exp\left(-2\pi \frac{|W_l|^2}{lbF}\right). \quad (26)$$

Hierin läßt sich W_l und $l \cdot b$ noch durch Lückenbreite und effektive Masse ausdrücken. Aus der Brillouinschen Näherung folgt:

$$\begin{aligned} J &= 2|W_l| \\ \left. \frac{d^2 E_l(k)}{dk^2} \right|_{k=\frac{l}{2}} &= \frac{1}{m_{\text{Defektel}}^*} = 1 - \frac{(lb)^2}{4|W_l|} \\ \left. \frac{d^2 E_{l+1}(k)}{dk^2} \right|_{k=\frac{l}{2}} &= \frac{1}{m_{\text{El}}^*} = 1 + \frac{(lb)^2}{4|W_l|} \\ \frac{2}{m^*} &= \frac{1}{m_{\text{El}}^*} + \frac{1}{|m_{\text{Def}}^*|} = \frac{(lb)^2}{2|W_l|}. \end{aligned}$$

Damit erhält man aus (26) in vollständiger Übereinstimmung mit (16):

$$w_{\text{Übergang}} = \exp - \frac{\pi}{4} \frac{(2m^*)^{\frac{1}{2}} I^{\frac{3}{2}}}{\hbar e F}. \quad (27)$$

Natürlich entsprechen dieser Näherung keine wirklich vorkommenden Gitter; die Berechnung effektiver Massen mittels der Brillouinschen Näherung dürfte völlig unreal sein. Sie ist hier aber konsequent, denn die Rechnung soll zeigen, daß die Formel (27) für zwei entgegengesetzte, wenn vielleicht auch nicht vorkommende Extremfälle gilt; die Übereinstimmung rechtfertigt die Anwendung von (27) in einem Wertebereich der Größe $p \sim (2m^*)^{\frac{1}{2}} J^{\frac{3}{2}} / \hbar e F$, der der Berechnung weniger zugänglich ist.

Bei der Herleitung von (27) sind im Abschnitt II die vorhergehenden und nachfolgenden Reflektionen durch Beschneidung des Differential-

gleichungssystems ausgeschaltet worden. Das ist nur dann erlaubt, wenn die benutzten asymptotischen Entwicklungen schon zur Zeit $|t| = \frac{b}{4F}$, in der Mitte zwischen zwei aufeinanderfolgenden Reflektionen, brauchbar sind; andernfalls überlagern und beeinflussen sich Reflektionen an verschiedenen Lücken. Die Bedingung für die Zulässigkeit der Herleitung ist

$$|\mu| \ll |z|, \quad \text{also} \quad \frac{|W|^2}{(lbF)^{\frac{3}{2}}} \ll \frac{b}{4F}, \quad F \gg \frac{1}{b} \left(\frac{2W}{lb} \right)^4,$$

d.h., die Zeit $b/4F$ muß größer sein als eine für die Reflektion offenbar charakteristische Zeitdauer $|W|^2/(lbF)^{\frac{3}{2}}$. Diese Bedingung ist das Analogon zur Voraussetzung schmaler Lücken und breiter Bänder im Abschnitt I.

Meinen herzlichen Dank möchte ich Herrn Professor Dr. F. HUND für sein Interesse an dieser Arbeit und deren ständige Förderung aussprechen; der Deutschen Forschungsgemeinschaft danke ich für eine Herrn Professor HUND gewährte Beihilfe zur Unterstützung meiner Arbeit und nicht zuletzt gilt mein Dank der Studienstiftung des Deutschen Volkes, deren durch viele Jahre gewährte allseitige Förderung mit dieser Arbeit ihren Abschluß findet.

Anhang

Es ist noch der auf S. 65 benutzte Hilfssatz zu beweisen, daß man

1. mit der Anfangsbedingung $c_1 \rightarrow 1$, $c_2 \rightarrow 0$, ($|u| \rightarrow \infty$) für das System (10) dieselbe Lösung erhält, ob man nun $|u| \rightarrow \infty$ auf dem Halbstrahl $\arg u = \pi$ oder dem Halbstrahl $\arg u = \frac{\pi}{2}$ (linke Hälfte des Weges w_u der Fig. 1 a) meint,

2. für $c_2(u)$ im Limes $|u| \rightarrow \infty$ denselben Grenzwert auf den Halbstrahlen $\arg u = 0$ und $\arg u = \frac{\pi}{2}$ (rechte Hälfte von w_u) erhält.

Dazu wird zweckmäßig nicht das System (10), sondern das entsprechende System für die Größen

$$b_1(u) = a_1(u) \exp - \frac{p}{i} \int_1^u \sqrt{4+u^2} du, \quad b_2(u) = a_2(u) \exp \frac{p}{i} \int_1^u \sqrt{4+u^2} du$$

betrachtet, es lautet

$$\left. \begin{aligned} i b_1'(u) &= \pm b_1(u) \cdot p \left(u + \frac{2}{u} + \sum_{\nu=3}^{\infty} \frac{c_{\nu}}{u^{\nu}} \right) + b_2(u) \cdot q \sum_{\nu=2}^{\infty} \frac{d_{\nu}}{u^{\nu}} \\ i b_2'(u) &= b_1(u) \cdot q \cdot \sum_{\nu=2}^{\infty} \frac{d_{\nu}}{u^{\nu}} \mp b_2(u) \cdot p \left(u + \frac{2}{u} + \sum_{\nu=3}^{\infty} \frac{c_{\nu}}{u^{\nu}} \right), \end{aligned} \right\} \quad (28)$$

wobei für die Funktionen $\sqrt{4+u^2}$, $(4+u^2)^{-1}$ gleich deren Laurent-Reihe im Äußeren des Kreises K der Fig. 3 eingesetzt wurde; das obere Vorzeichen ist dabei jeweils auf dem oberen Blatt, das untere auf dem unteren Blatt der Fig. 3 gemeint. (28) hat

formale Lösungen

$$\left. \begin{aligned} b_1^I(u) \\ b_2^I(u) \end{aligned} \right\} = \exp \left[\frac{p}{i} \left(\frac{u^2}{2} + 2 \ln u \right) \right] \left\{ \begin{aligned} 1 - \sum_{v=1}^{\infty} \frac{e_v^+}{u^v} \\ \sum_{v=3}^{\infty} \frac{f_v^+}{u^v} \end{aligned} \right.$$

$$\left. \begin{aligned} b_1^{II}(u) \\ b_2^{II}(u) \end{aligned} \right\} = \exp \left[\frac{p}{i} \left(\frac{u^2}{2} + 2 \ln u \right) \right] \left\{ \begin{aligned} \sum_{v=3}^{\infty} \frac{f_v^-}{u^v} \\ 1 - \sum_{v=1}^{\infty} \frac{e_v^-}{u^v} \end{aligned} \right.$$

deren Koeffizienten e_v^+ , e_v^- , f_v^+ , f_v^- sich durch Koeffizientenvergleich aus (28) berechnen lassen.

Der Exponentialanteil $\exp \pm \frac{p}{i} \frac{u^2}{2}$ dieser formalen Lösungen definiert die „kritischen Halbstrahlen“ $\arg u = n \frac{\pi}{2}$, $n = \dots -1, 0, 1, \dots$, auf denen der Exponent

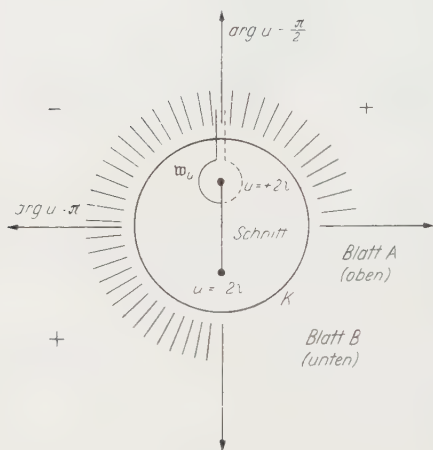


Fig. 3. Stokessche Sektoren

rein imaginär ist; diese Halbstrahlen zerlegen das Äußere von K in Sektoren, innerhalb welcher die formalen Lösungen jeweils exponentiell entweder anwachsen oder abnehmen. Die Theorie der asymptotischen Lösungen linearer Differentialgleichungen (TRJITZINSKI⁷) liefert das Ergebnis, daß diese formalen Lösungen asymptotische Darstellungen wirklicher Lösungen sind, gültig jeweils in einem offenen Gebiet aus drei Sektoren und zwei kritischen Halbstrahlen, wenn der Mittelsektor ein solcher ist, in dem die Funktion exponentiell abnimmt.

Hier ist nun diejenige Lösung wichtig, die auf dem Halbstrahl $\arg u = \pi$ des Blattes A durch I asymptotisch dargestellt wird, für diese Lösungen folgt nämlich:

$$a_1(u) = b_1^I(u) \exp \frac{p}{i} \int^u \sqrt{4+u^2} du$$

$$\approx \left(1 + \sum_{v=1}^{\infty} \frac{e_v^+}{u^v} \right) \exp \frac{p}{i} \int^u \left\{ \sqrt{4+u^2} + u + \frac{2}{u} \right\} du \quad (u \rightarrow -\infty),$$

$$|a_2(u)| = |b_2^I(u)| \rightarrow 0 \quad (u \rightarrow -\infty).$$

Die Darstellung I gilt für diese Lösung in dem ganzen in Fig. 3 schraffierten Winkelbereich des Blattes A (die Vorzeichen deuten das Anwachsen oder Abnehmen des Exponenten an), insbesondere also auch auf dem Halbstrahl $\arg u = \frac{\pi}{2}$, so daß auf diesem die betrachtete Lösung ebenfalls die Grenzwerte $a_1 = 1$, $a_2 = 0$ hat.

⁷ TRJITZINSKI, W. J.: Acta math. Ups. 62, 167 (1934).

Es interessiert nun das Verhalten dieser Lösung auf den Halbstrahlen $\arg u = 0$ und $\arg u = \frac{\pi}{2}$ des Blattes B. Die Funktionen $b_{1,2}(u)$ haben auf diesen Halbstrahlen die (im allgemeinen voneinander verschiedenen) asymptotischen Darstellungen

$$b_{1,2}(u) = \alpha^I b_{1,2}^I(u) + \alpha^{II} b_{1,2}^{II}(u) \quad (\arg u = 0, \text{ Blatt B})$$

$$b_{1,2}(u) = \beta^I b_{1,2}^I(u) + \beta^{II} b_{1,2}^{II}(u) \quad \left(\arg u = \frac{\pi}{2}, \text{ Blatt B} \right).$$

Über die Koeffizienten $\alpha^I, \alpha^{II}, \beta^I, \beta^{II}$ kann man nicht ohne weiteres Auskunft geben, man kann aber sofort sehen, daß $\alpha^{II} = \beta^{II}$ ist, denn in dem offenen Sektor $0 < \arg u < \frac{\pi}{2}$, Blatt B, in dem beide Darstellungen gelten, muß ihr Quotient für $|u| \rightarrow \infty$ gegen eins gehen. Da b_2^I auf beiden Halbstrahlen mit $|u| \rightarrow \infty$ Null wird, ist damit gezeigt, daß $|b_2(u)|$ und damit $|a_2(u)|$ auf beiden Halbstrahlen gegen den gleichen Grenzwert geht.

Aus dem II. Physikalischen Institut der Universität Heidelberg

Das β^+ -Spektrum des Na^{22} *

Von

HEINRICH LEUTZ

Mit 3 Figuren im Text

(Eingegangen am 8. Mai 1961)

The β^+ -spectrum of Na^{22} was measured with a scintillation spectrometer. To avoid source absorption and scattering troubles the Na^{22} source was built in in the lattice of NaJ(Tl) -crystals. The observed β^+ -spectrum of Na^{22} has a statistical shape. The Fierz term b is obviously zero the value obtained in this paper is $(+0,8 \pm 6,0) \cdot 10^{-3} m_0 c^2$.

Einleitung

LANGER u. Mitarb. haben die β -Spektren von In^{114} , Y^{90} , P^{32} ¹ und Na^{22} ² mit einem magnetischen Spektrometer untersucht und jeweils Abweichungen von dem bisher gemessenen Verlauf gefunden. Alle vier Isotope zerfallen durch Gamow-Teller-Wechselwirkung. Nach Spin- und Paritätsauswahlregeln sind die Zerfälle von In^{114} , P^{32} und Na^{22} erlaubt und der Zerfall von Y^{90} einfach unique verboten. Die Energieverteilung der bei erlaubten Zerfällen emittierten β -Teilchen wird folgendermaßen beschrieben:

$$N(W) dW = \text{const } p W(W_0 - W)^2 F(1 \mp b/W) dW. \quad (1)$$

Der Teilchenimpuls p und die Teilchenenergie W sind darin durch die Beziehung $W^2 = 1 + p^2$ miteinander verbunden, so daß zwischen der kinetischen Energie E der β -Teilchen und der Teilchenenergie W der Zusammenhang $W = 1 + E/m_0 c^2$ ($m_0 c^2$ = Ruhenergie des Elektrons) besteht. Die Fermi-Funktion F eliminiert die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Kern und auslaufendem Teilchen. Sofern auch noch endliche Kernaussdehnung und die Abschirmung des Kernfeldes durch die Hüllenelektronen berücksichtigt sind, wird im folgenden das Symbol F^+ verwendet. Der Fierz-Term b gibt mögliche Interferenzen zwischen den

* Auszugsweise vorgetragen auf der Sitzung des Fachausschusses Kernphysik und kosmische Strahlung am 19. 4. 1961 in Bad Nauheim.

¹ JOHNSON, O.E., R.G. JOHNSON and L.M. LANGER: Phys. Rev. **112**, 2004 (1958).

² HAMILTON, J.H., L.M. LANGER and W.G. SMITH: Phys. Rev. **112**, 2010 (1958).

Kopplungskonstanten an, wobei für Positronen das negative und für Elektronen das positive Vorzeichen in (1) gilt.

LANGER u. Mitarb. erhielten für die von ihnen gemessenen β -Spektren jeweils den Faktor $(1 + b/W)$, bei dem das Vorzeichen von b , im Gegensatz zum Fierz-Term, auch bei Positronenzerfällen positiv ist. Im folgenden soll über Messungen des Positronenspektrums von Na^{22} mit einem NaJ(Tl) -Szintillationsspektrometer berichtet werden. Das radioaktive Material war bei diesen Messungen trägerfrei in das Gitter der NaJ(Tl) -Kristalle eingebaut. Dadurch wurden Verfälschungen der Meßergebnisse vermieden, wie sie durch Quellenabsorption und Streuung der Teilchen in magnetischen Spektrometern auftreten. Auf diese Weise sollte versucht werden, die von LANGER u. Mitarb. bei Na^{22} gefundene Abweichung vom Verlauf des erlaubten Spektrums zu reproduzieren.

Experimentelle Einzelheiten

Die NaJ(Tl) -Kristalle, die mit Na^{22} imprägniert waren, wurden in Gefäßen aus Supremaxglas gezüchtet. Die NaJ(Tl) -Schmelze wurde mit einer Geschwindigkeit von 1,2 mm pro Stunde in einem Ofen abgesenkt, der durch einen Temperaturgradienten von etwa 10°C/mm in zwei Hälften mit Temperaturen von 700°C bzw. 450°C unterteilt war. Der elektronische Teil des Szintillationsspektrometers bestand im wesentlichen aus einem Photomultiplier RCA 6342, einem stark gegengekoppelten Proportionalverstärker und einem Fünf-Kanal-Impulshöhenanalysator.

Meßergebnisse

Na^{22} zerfällt durch Positronenemission ($\sim 90\%$) und Elektroneneinfang ($\sim 10\%$) über ein 1275 keV -Niveau des Ne^{22} . Der direkte Übergang in den Grundzustand des Ne^{22} ($\sim 0,06\%$) braucht im folgenden ebenso wie die durch den Elektroneneinfang ausgelösten Ereignisse nicht berücksichtigt zu werden. Mit einem Szintillationsspektrometer werden jedoch außer den Positronen auch Vernichtungs- und 1275 keV γ -Quanten gezählt, soweit sie im NaJ(Tl) -Kristall absorbiert werden. Da das Na^{22} in dieser Arbeit im Gitter des Szintillationskristalls eingebaut war, wurden außer dem Positronenspektrum auch die entsprechenden β - γ -Koinzidenzspektren registriert.

Deshalb wurde zunächst der Einfluß der Kristallgrößen auf die Intensität der Koinzidenzspektren untersucht. Die Spektren von vier Kristallen, die verschieden groß waren, sind in Fig. 1 dargestellt. Bei dem $35 \times 38 \times 38 \text{ mm}$ großen Kristall erkennt man neben dem koinzidenzfreien Positronenspektrum besonders deutlich das Koinzidenz-

spektrum mit einem Vernichtungsquant (A in Fig. 1) und das Koinzidenzspektrum mit beiden Vernichtungsquanten bzw. mit dem 1275 keV γ -Quant (B in Fig. 1). Die Intensitäten der Koinzidenzspektren nehmen mit der Kristalldicke ab; der hochenergetische Teil des koinzidenzfreien Positronenspektrums wird selbst bei den dünnen Kristallen noch von dem Koinzidenzspektrum mit einem Vernichtungsquant überlagert.

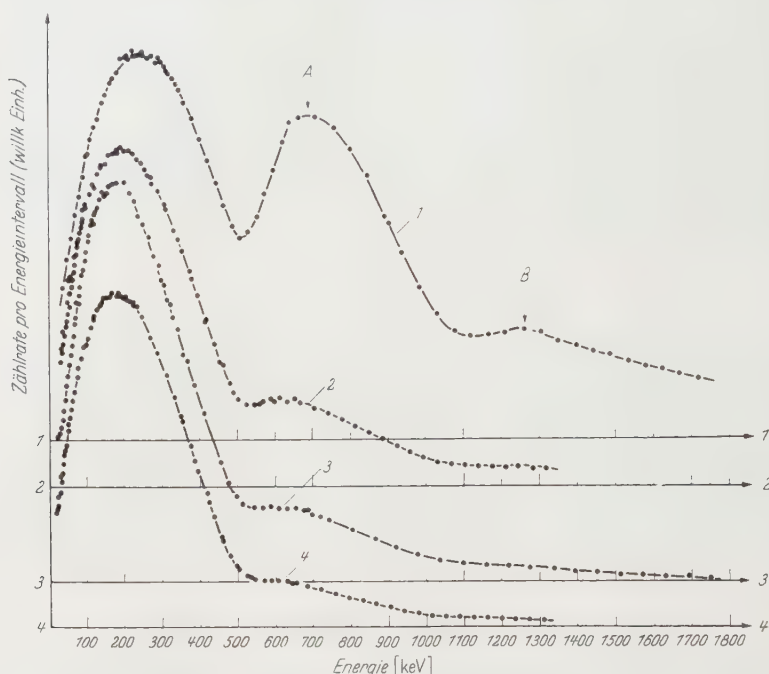


Fig. 1. Energieverteilungen, die mit einem Szintillationsspektrometer gemessen wurden, in dessen NaJ(Tl)-Kristalle Na^{22} eingebaut war. Zu den einzelnen Spektren gehören jeweils die entsprechend markierten Nullwerte der Ordinate. A Koinzidenzspektrum mit einem Vernichtungsquant; B Koinzidenzspektrum mit beiden Vernichtungsquanten bzw. mit dem 1275 keV γ -Quant. 1 Kristallgröße: $35 \times 38 \times 38$ mm; 2 Kristallgröße: $9 \times 22 \times 22$ mm; 3 Kristallgröße: $5 \times 22 \times 22$ mm; 4 Kristallgröße: $3 \times 22 \times 23$ mm

Den Einfluß dieser Überlagerung sieht man in Fig. 2. Dort ist die Größe

$\left| \frac{N(W)}{pWF} \right|$ als Funktion der Teilchenenergie W (Kurieplot) für die 9, 5 und 3 mm dicken Kristalle aufgetragen. Als Schnittpunkte der eingezeichneten Geraden mit der Energieachse wurde die von DANIEL³ bestimmte Grenzenenergie $W_0 = 2,067$ angenommen. LANGER u. Mitarb.² fanden Grenzenenergien zwischen 2,063 und 2,069. Die Werte für die Fermi-Funktion F wurden den Tabellen von ROSE u. Mitarb.⁴ entnommen.

³ DANIEL, H.: Nuclear Phys. **8**, 191 (1958).

⁴ ROSE, M. E., C. L. PERRY and N. M. DISMUKE: ORNL 1459 (1953).

Bei NaJ(Tl) -Kristallen, die dünner als etwa 3 mm waren, wurde das Positronenspektrum über die zulässigen Meßfehler hinaus verfälscht, weil der Anteil der Positronen, die aus den Randschichten des Kristalls entweichen konnten, zu groß wurde. In Fig. 3 ist die aus den unkorrigierten Meßwerten des Kristalls mit der optimalen Dicke von 3 mm berechnete prozentuale Abweichung des Formfaktors

$$\frac{N(W)}{(W_0 - W)^2 p W F^+} \quad (2)$$

von einem konstanten Mittelwert aufgetragen. Als Grenzenenergie W_0 wurde wieder der Wert von DANIEL³ eingesetzt, die Werte für F^+ wurden den Tabellen von DSHELJEPOW und SYRJANOWA⁵ entnommen. Außerdem wurde aus den unkorri-



Fig. 2. Kurieplots der 9 mm (2), 5 mm (3) und 3 mm (4) dicken Kristalle. Als Grenzenenergie W_0 ist der Wert von DANIEL³ eingetragen

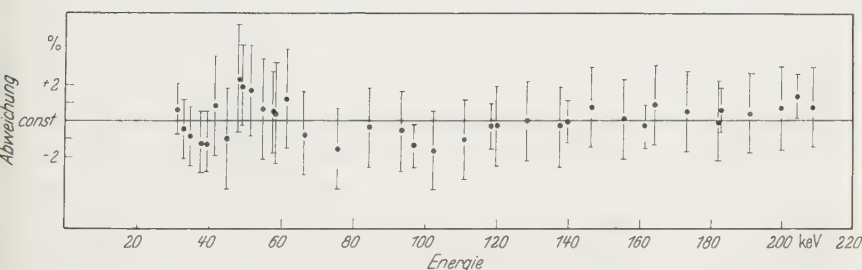


Fig. 3. Prozentuale Abweichung der gemessenen Formfaktoren von einem energieunabhängigen Mittelwert. Eingezeichnet sind die dreifachen statistischen Fehler

gierten Zählraten $N(W)$, die zwischen 200 und 30 keV mit dem 3 mm dicken Kristall gemessen wurden, die Größe b aus Beziehung (1) berechnet:

$$b = (+0,8 \pm 2,0) 10^{-3} m_0 c^2.$$

⁵ DSHELJEPOW u. SYRJANOWA: Einfluß des elektrischen Feldes des Atoms auf den Beta-Zerfall. Moskau u. Leningrad: Verl. der Akad. der Wiss. der UdSSR 1956.

Als Fehler ist darin der mittlere quadratische Fehler angegeben. Berücksichtigt man noch zusätzlich den mittleren dreifachen statistischen Meßfehler, so erhält man:

$$b = (+0,8 \pm 6,0) \cdot 10^{-3} m_0 c^2.$$

Diskussion

Die in Fig. 2 eingezeichneten Kurieplots für die 9, 5 und 3 mm dicken NaJ(Tl) -Kristalle zeigen, daß der Einfluß der Koinzidenzspektren im niederenergetischen Teil des Positronenspektrums praktisch verschwindet. Aber gerade in diesem Bereich wirkt sich ein Term der Form $(1 + b/W)$ am stärksten aus. Die von LANGER u. Mitarb.² zwischen 150 und 50 keV gefundenen Abweichungen vom linearen Verlauf des Kurieplots treten hier bei keinem der drei Kristalle auf. LANGER u. Mitarb. mußten, um ihre Werte zu linearisieren, in dem Korrekturfaktor $(1 + b/W)$ für b die Werte 0,25, 0,30 und 0,35 einsetzen.

Unterhalb 30 keV treten bei allen NaJ(Tl) -Kristallen starke Abweichungen der Meßwerte von der statistischen Form des Positronenspektrums auf. LANGER u. Mitarb.² haben ein Elektronenspektrum mit einer Grenzenergie zwischen 40 und 150 keV bei ihren Messungen am Na^{22} gefunden. Mit der hier angewendeten Meßmethode können Elektronen und Positronen nicht voneinander unterschieden werden. Da die Abweichungen von der statistischen Form weder durch die aus den Randschichten der Kristalle entweichenden Positronen noch durch thermisches Rauschen des Photomultipliers oder andere elektronische Effekte erklärt werden können, liegt es nahe, diese Abweichungen in Übereinstimmung mit LANGER u. Mitarb. einem zusätzlichen Teilchenspektrum zuzuschreiben. Die Grenzenergie dieses zweiten Spektrums würde nach diesen Messungen bei etwa 30 keV liegen.

Der aus den Meßwerten des 3 mm dicken Kristalls zwischen 200 und 30 keV berechnete Wert für den Fierz-Term rechtfertigt die Annahme, diesen Term Null zu setzen. In guter Übereinstimmung hierzu hat DANIEL³ aus Meßwerten zwischen 470 und 160 keV für b den Wert $(-1,6 \pm 2,0) \cdot 10^{-2} m_0 c^2$ (mit mittlerem Fehler) bzw. $(-1,6 \pm 8,0) \times 10^{-2} m_0 c^2$ (mit Fehlergrenze) ermittelt. Ebenso haben WAPSTRA u. Mitarb.⁶ aus dem Verzweigungsverhältnis von Elektroneneinfang zu Positronenemission des Na^{22} für b den Wert $(-1,2 \pm 2,2) \cdot 10^{-2} m_0 c^2$ erhalten.

Herrn Professor Dr. O. HAXEL möchte ich für das dieser Arbeit entgegengebrachte Interesse und für anregende Diskussionen herzlich danken. Herr cand. phys. H. WENNINGER hat mich bei der Züchtung der NaJ(Tl) -Kristalle und bei der Auswertung der Meßergebnisse in dankenswerter Weise unterstützt. Das Bundesministerium für Atomkernenergie hat diese Arbeit durch Bereitstellung apparativer Mittel gefördert.

⁶ KONIJN, J., B. VAN NOOIJEN, H. L. HAGEDOORN and A. H. WAPSTRA: Nuclear Phys. **9**, 296 (1958/59).

Aus dem Physikalisch-Technischen Institut
der Deutschen Akademie der Wissenschaften zu Berlin,
Bereich Elektronische Halbleiter

Kontaktspannungsmessungen an CdS-Einkristallen

Von

F. ECKART und H. SCHULZ

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 27. April 1961)

Aus Kontaktspannungs-Messungen werden die Austrittsarfsänderungen von CdS-Einkristallen bei verschiedenen Oberflächenbeladungen und nach verschiedener Vorbehandlung untersucht. Die Ergebnisse werden unter der Annahme einer Anreicherungsrandschicht zu deuten versucht.

1. Einleitung

Durch Bestimmung der Austrittsarbeit lassen sich Veränderungen der Oberfläche, wie sie beispielsweise bei der Adsorption eines Gases auftreten, erfassen. Diese Austrittsarbeit kann durch Messung der Volta- bzw. Kontaktspannung gegenüber einer Vergleichselektrode bestimmt werden.

Änderungen der Austrittsarbeit unter dem Einfluß verschiedener Gasatmosphären sind von BRATTAIN und BARDEEN¹ erstmalig experimentell nachgewiesen worden. Elektronenniveaus an der Oberfläche von Halbleitern wurden von TAMM bereits 1932 als Folge der an der Oberfläche unterbrochenen Gitterperiodizität diskutiert. Physikalisch den gleichen Effekt haben adsorbierte Fremdatome, deren Energiezustände innerhalb des verbotenen Bandes des Halbleiters liegen. Die mehr oder weniger vollständige Besetzung der Oberflächenniveaus führt zu positiven oder negativen elektrischen Belegungen und damit zu kompensierenden Raumladungen in oberflächennahen Zonen des Halbleiters, die eine Auf- oder Abwölbung der Bandkanten bzw. des Potentials an der Oberfläche des Halbleiters bewirken.

Da auch die Untersuchungen an CdS zeigen, daß die Vorgänge an der Kristalloberfläche für die physikalischen Eigenschaften wesentlich sind, so wurden Kontaktpotentialmessungen von verschieden oberflächenbehandelten CdS-Einkristallen durchgeführt.

¹ BRATTAIN, W.H., and J. BARDEEN: Surface Properties of Germanium. Bell. Syst. Techn. J. **32**, 1 (1953).

2. Versuchsanordnung

Von den verschiedenen Möglichkeiten, Kontaktspannungen an Halbleitern zu messen, wurde der Schwingkondensator-Methode deshalb der Vorzug gegeben, da diese es gestattet, Kontaktspannungs-Messungen auch im Vakuum durchzuführen, sowie ihre Änderungen zeitlich zu verfolgen.

Die gewählte Anordnung sowie das Meßgefäß sind in Fig. 1 halbschematisch dargestellt; das Schwingssystem besteht aus den Stahl-

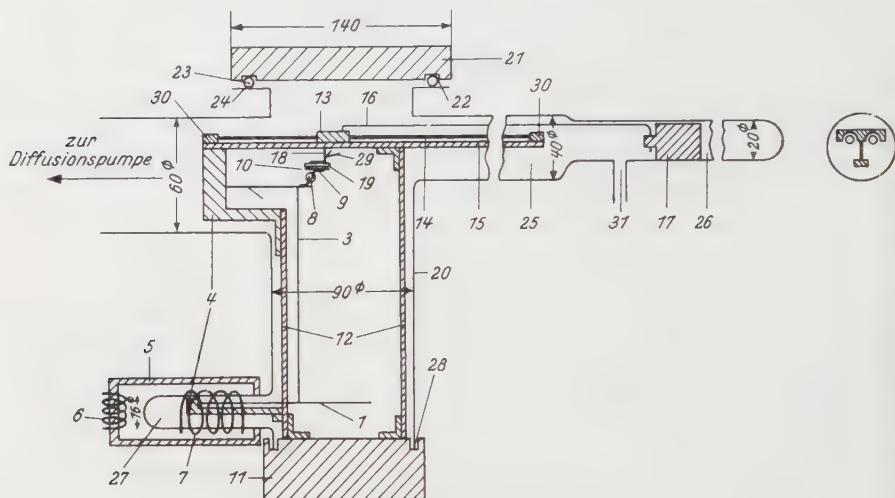


Fig. 1. Meßgefäß zur Untersuchung der Kontaktspannung an CdS-Einkristallen unter verschiedenen Atmosphären und im Vakuum. 1 Schwingfeder (St), 2 Kondensatorfeder (St), 3 Stahldraht, 4 Halterung für Schwingssystem (Al), 5 Elektromagnet, 6 Magnetspule, 7 Erregerspule, 8 Weichglasperle, 9 Platindrähte, 10 Meßplatte (Au), 11 Grundplatte (Al), 12 Verstreben (Al), 13 Kristallwagen, 14 Schienen für Kristallwagen (St), 15 geschlitztes Al-Blech, 16 Aluminiumdraht, 17 Eisenklotz, 18 Kristallhalter (Au), 19 Kristall, 20 Glaswandung, 21 Deckplatte (Al), 22 Nut der Deckplatte, 23 Gummidichtung, 24 Glasflansch, 25 Glasrohr für Gleitvorrichtung, 26 Glasrohr für Eisenklotz, 27 Glasrohr für Schwingfeder, 28 Nut der Grundplatte, 29 Thermoelement, 30 Halterung für Schienen, 31 Gaseinlaßstutzen

federn (1) und (2), die in Aluminiumklötzen (4) befestigt und durch den Stahldraht (3) miteinander verbunden sind. (2) trägt die Schwingkondensator- bzw. Meßplatte (10). Die Stahlfeder (1) liegt im Feld eines gleichstromvorerregten Magneten (5). Wird die Spule (7) mit niederfrequentem Strom erregt, so schwingt die Feder (1) und die Schwingungen werden über (2) und (3) auf die Meßplatte (10) übertragen. Gearbeitet wird bei der Resonanzfrequenz von etwa 130 Hz. Als Meßplatte (10) dient ein Goldplättchen ($7 \times 7 \times 0,1 \text{ mm}^3$), das gegen Erde mit einer Weichglasperle (8) isoliert ist (Isolationswiderstand $> 10^{11} \Omega$). An die in die Weichglasperle (8) eingeschmolzenen Platindrähte (9) werden Meßplatte (10) und Feder (2) angepunktet. An der senkrechten

Verstrebung (12) sind die Halterungen (4) für das Schwingssystem befestigt. Der Kristall (19) wird an einem Gleitsystem befestigt und kann in den Rezipienten ein- bzw. ausgefahren werden. Die Kristalle werden auf einem Goldplättchen mit Indium aufgelötet*. Der Glasrezipient (20) wird unten in einer Aluminiumgrundplatte eingekittet und auf der anderen Seite mit einem Flansch über einem Gummiring abgedichtet. Der Glasrezipient selbst ist metallisiert. Das gesamte Gefäß ist abgeschirmt. Über den Ansatzstutzen (31) können verschiedene Gase eingelassen werden. Der Druck im Meßgefäß beträgt während der Messungen jeweils 450 Torr. Die zu untersuchenden Kristalle werden vor dem Gaseinlaß im Vakuum mit Infrarotstrahler ausgeheizt**.

Das Blockschaltbild der gesamten Meßanordnungen zeigt Fig. 2. Der Tongenerator liefert den Erregerstrom für das Schwingssystem. Die am Schwingkondensator entstehende Wechselspannung wird dem Vorverstärker (mit Elektrometerröhre T 113) zugeführt und die auftretende Spannung mit Kompensator bestimmt. Der Gitterableitkondensator des Elektrometervverstärkers begrenzt die Zeitkonstante, die mit der gewählten Dimensionierung etwa $\frac{1}{10}$ sec beträgt. Der Hauptverstärker besteht aus zwei hintereinandergeschalteten Mittelfrequenz-Meßverstärkern mit je 100facher Verstärkung. Der nachgeschaltete Schmalbandverstärker ist auf die Resonanzfrequenz des Schwingsystems abgestimmt. Die Meßwerte selbst werden nach einer 10⁷fachen Verstärkung gemessen. Der Oszillograph diente als Nullinstrument. Die Meßgenauigkeit beträgt etwa ± 10 mV.

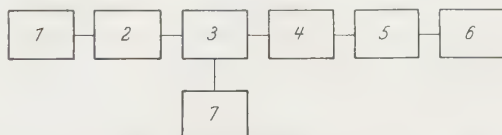


Fig. 2. Blockschaltbild der Meßanordnung. 1 Tongenerator, 2 Schwingkondensator (Meßgefäß), 3 Vorverstärker, 4 Hauptverstärker, 5 Schmalbandverstärker, 6 Oszillograph, 7 Kompensator

3. Versuchsdurchführung

Vorversuche zeigten, daß sich die Austrittsarbeit der Vergleichselektrode [Meßplatte (10) aus Gold] während des jeweils bei Zimmertemperatur durchgeführten Meßzyklus nicht änderte, wenn diese mehrere Tage in trockenem Sauerstoff bei 450 Torr behandelt wurde.

Gemessen wird an etwa 0,3 mm dicken, nach dem Frerichschen Verfahren hergestellten CdS-Einkristallplättchen, und zwar nach folgendem Zyklus***:

* Das Auflöten unter Schutzgas ergab gegenüber dem an Luft keine Unterschiede.

** 3×35 min auf max. etwa 160°C mit jeweils Pausen von etwa 30 min.

*** Gemessen wird stets bei Zimmertemperatur.

- a) An Luft.
- b) Im Hochvakuum.
- c) Im Hochvakuum bei zusätzlicher Belichtung.
- d) Ausheizen 3×35 min bei Temperaturen bis 160°C .
- e) Im trockenen Sauerstoff (Druck 450 Torr).
- f) Sauerstoff abgepumpt.
- g) Wie d) bis f) jeweils mit trockenem Stickstoff, trockenem Wasserstoff und feuchtem Stickstoff.

Nach diesem Zyklus werden die Kristalle beglimmt und die zeitlichen Änderungen der Kontaktspannung nach gleichem Schema wie oben verfolgt.

Zur Beglimmung liegen die Kristalle auf einem anodisch geschalteten Aluminiumblech. Die Kristalle tauchen gerade in das negative Glimmlicht ein. Bei 500 V Glimmspannung und einem Entladestrom von 10 mA bei einem Druck von 0,2 Torr werden nach 20 min noch keine sichtbaren Änderungen der Oberfläche festgestellt. Bei stärkerer Beglimmung zeigen die Kristalle auf der Oberfläche einen dunklen Belag.

4. Meßergebnisse

Untersucht wurden CdS-Einkristalle aus den Herstellungs-Chargen 233 und 244. Bei beiden betrug die Temperatur in der Wachstumszone 900°C , die Strömungsgeschwindigkeit für Wasserstoff 0,35 l/min und

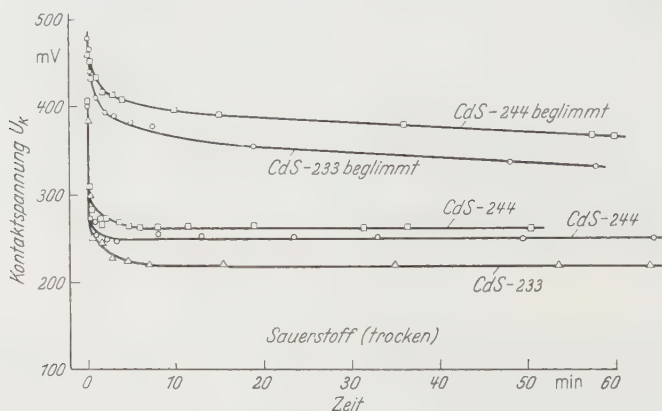


Fig. 3. Kontaktspannung U_K an CdS-Einkristallen verschiedener Herstellung mit und ohne Beglimmung unter der Einwirkung von trockenem Sauerstoff

jene für Schwefelwasserstoff 0,15 l/min. Die Verdampfungsgeschwindigkeit des Kadmiums betrug für Charge 233 etwa 0,15 g/min und jene für Charge 244 etwa 0,2 g/min. Die höhere Cd-Verdampfungsgeschwindigkeit bei Charge 244 läßt vermuten, daß die gezüchteten Kristalle mit Cd angereichert sind.

Trockener Sauerstoff setzt die Kontaktspannung U_K bei allen untersuchten CdS-Kristallen herab (Fig. 3, Tabelle). Bei nicht beglimmten Kristallen sinkt U_K anfänglich sehr schnell und erreicht nach

Tabelle. Kontaktspannungen gemessen an CdS-Einkristallen verschiedener Herstellung und nach verschiedener Vorbehandlung

CdS-Charge und Behandlung	Kontaktspannungen U_K mV	Änderungen der Kontaktspannung ΔU_K in mV nach Behandlung im				
		Sauerstoff	Stickstoff (feucht)		Stickstoff (trocken)	Wasserstoff
			anfängliche Erhöhung	anschl. Erniedrigung		
233	495 ... 510	100 ...	+ 60 ...	- 60 ...	-	-
244	415 ... 440	- 180	+ 120	- 135	-	-
schwache Beglimmung	510 ... 525	- 90 ...	+ 85 ...	0 ...	-	-
starke Beglimmung	545 ... 550	- 140	+ 130	- 95	-	-

maximal 10 min den Endwert. Bei beglimmten Kristallen sind die Änderungen nicht ganz so groß; einer anfänglich raschen Änderung schließt sich ein größerer Übergangsbereich an.

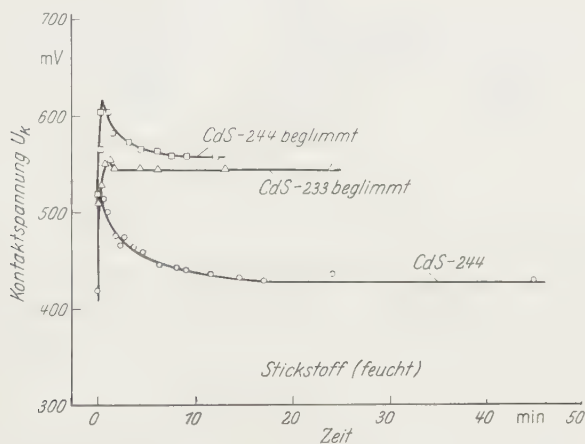


Fig. 4. Kontaktspannung U_K an CdS-Einkristallen verschiedener Herstellung mit und ohne Beglimmung unter der Einwirkung von feuchtem Stickstoff

Reiner Stickstoff und reiner Wasserstoff haben innerhalb der Meßgenauigkeit keinen Einfluß auf die Kontaktspannung.

Feuchter Stickstoff (Fig. 4) führt bei allen Kristallen zunächst zu einer Erhöhung der Kontaktspannung, die ein Maximum durchläuft, um dann wieder abzufallen und schließlich ihren Endwert zu erreichen.

Bei nicht beglimmten Kristallen steigt die Kontaktspannung anfänglich rascher an als bei beglimmten Kristallen. Die erhaltenen Meßergebnisse sind in der Tabelle einander gegenübergestellt.

5. Diskussion

Die thermodynamische Austrittsarbeit ψ ist bei Metallen (ψ_M) und Halbleitern (ψ_H) allgemein definiert als die Differenz zwischen der rein elektrostatischen Energie eines ruhenden Elektrons dicht außerhalb der Metall- (V_{M0}) bzw. Halbleiteroberfläche (V_0) und der Fermi-Energie η :

$$\left. \begin{aligned} \psi_M &= -\eta_M - eV_{M0}; \\ \psi_H &= -\eta_H - eV_0; \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

wobei η_H : Fermi-Energie des Metalls und η_H : Fermi-Energie des Halbleiters.

Die Kontaktspannung U_K ist durch die Differenz der elektrostatischen Außenpotentiale V_{M0} und V_0 gegeben.

$$U_K = V_0 - V_{M0}. \quad (2)$$

Im thermischen Gleichgewicht ist $\eta_H = \eta_M$, d. h.

$$-eU_K = \psi_H - \psi_M. \quad (3)$$

Ist $\psi_M = \text{const}$ und unabhängig von der Gasbeladung, dann kann die Änderung der Halbleitersaustrittsarbeit mit der Gasbeladung bzw. der Oberflächenbehandlung ermittelt werden. Wenn $\psi_M > \psi_H$ ist $U_K > 0$ und es ist:

$$\Delta\psi_H = -e\Delta U_K. \quad (4)$$

Eine Erhöhung der Kontaktspannung entspricht demnach einer Erniedrigung der Austrittsarbeit.

Die Fermi-Energie η des Halbleiters setzt sich allgemein zusammen aus dem chemischen Potential μ_H und einem elektrostatischen Anteil eV_H , wobei V_H das elektrostatische Potential am betrachteten Halbleiterort ist. Somit ist:

$$\psi_H = -\mu_H - e(V_0 - V_H). \quad (5)$$

Für $\psi_M = \text{const}$ erhält man die Kontaktspannungsänderung ΔU_K , und zwar ist:

$$+e\Delta U_K = +\Delta\mu_H + e\Delta(V_0 - V_H). \quad (6)$$

Ist die Änderung der Kontaktspannung U_K nur durch Änderung der Atmosphäre bedingt, dann ist $\mu_H = \text{const}$, $\Delta\mu_H = 0$ oder, da $V_0 - V_H = V_D$:

$$\Delta U_K = \Delta V_D. \quad (7)$$

Bei konstanter Dotierung wird demnach aus Kontaktspannungsmessungen die Änderung von V_D mit der Gasbeladung der Oberfläche ermittelt.

Da die Austrittsarbeit von Gold um 0,4 eV größer ist als jene von CdS² ($\psi_{\text{Au}} > \psi_{\text{CdS}}$) und durch Sauerstoffbeladung weiter erhöht wird³ ($\psi_{\text{Au}+\text{O}_2} = \psi_M > \psi_{\text{CdS}}$), so entspricht einer gemessenen Erhöhung des Absolutwertes der Kontaktspannung eine Verringerung der Austrittsarbeit des CdS.

Die Messungen zeigten, daß bei gegebener Dotierung ($n_H = \text{const}$) die Kontaktspannung gegen Au ihren größten Wert annimmt, wenn sich der CdS-Einkristall in einer mit feuchtem Stickstoff gesättigten Atmosphäre befindet (vgl. Fig. 4), d. h. die Austrittsarbeit ist dann am kleinsten. Die größte Austrittsarbeit wird im trockenen Sauerstoff gemessen (vgl. Fig. 3).

Die untersuchten CdS-Einkristalle mit verschiedenem n_H und verschiedener Oberflächenbehandlung (mit und ohne Beglimmung) ändern ihre Austrittsarbeit bei wechselnder Atmosphäre in qualitativ gleicher Weise (s. Tabelle). Der Absolutwert der Kontaktspannungs-Änderung hängt zwar relativ wenig, aber doch außerhalb der Meßfehler von der Dotierung, von der jeweiligen Oberflächenbehandlung und der Oberflächenbelegung ab.

Diese Ergebnisse lassen sich deuten, wenn man annimmt, daß sich in Sauerstoff-Atmosphäre Sauerstoffatome auf der CdS-Oberfläche anlagern, die unter dem Einfluß von Feuchtigkeit wieder desorbiert und zum Teil sogar überkompensiert werden.

CdS-Einkristalle der Charge 244 sind ihren Herstellungsbedingungen entsprechend gegenüber denen der Charge 233 mit Cd angereichert, d. h. nach bisherigen Ergebnissen ist $n_H(\text{CdS } 244) > n_H(\text{CdS } 233)$. Damit in Übereinstimmung ist der für Kristalle der Charge 244 gemessene höhere Dunkelstrom.

Der Cd-Überschuß kann neutrale Schwefellücken ($\text{S}_{\square}^{\times}$) erzeugen⁴, die schon bei Zimmertemperatur in eine einfach geladene Schwefellücke und ein freies Elektron dissoziieren und einen Term liefern, der etwa in der Mitte zwischen Leitungs- und Valenzband liegt. Es ist sehr wahrscheinlich, daß auch das zweite Elektron dissoziiert^{4,5}. Dieser so entstandene Term einer zweifach positiv geladenen Lücke liegt in der Nähe des Valenzbandes.

² ROSE, A., and R. W. SMITH: Space-Charge-Limited Currents in Single Crystals of CdS. Phys. Rev. **97**, 1531 (1955).

³ GINER, J., u. E. LANGE: Elektronenaustrittsspannungen von reinem und sauerstoffbedecktem Au, Pt und Pd. Naturwissenschaften **40**, 506 (1953).

⁴ KRÖGER, F. A., H. J. VINK and J. VAN DEN BOOMGARD: Controlled Conductivity in CdS Single Crystals. Z. phys. Chem. **203**, 1 (1954).

⁵ KRÖGER, F. A., and H. J. VINK: Die Ursache der Fluoreszenz in selbstaktiviertem ZnS, CdS und ZnO. J. Chem. Phys. **2**, 250 (1954).

Die erhaltenen Ergebnisse lassen sich zwanglos erklären, wenn man an der Oberfläche des CdS eine Anreicherungsschicht annimmt. Die Messung der Kontaktspannungen allein läßt indessen eine derartige Entscheidung nicht zu. Da für eine Anreicherungsrandschicht die Randdichte $n_R > n_H$ und $V_D \sim \ln \frac{n_R}{n_H}$ für $T = \text{const}$, so folgt eine Abnahme von V_D mit wachsendem n_H , d.h. die Austrittsarbeit der Cd-angereicherten Einkristalle ist größer als jene von „normalen“ Kristallen ($\psi_{\text{CdS } 244} > \psi_{\text{CdS } 233}$).

Da bereits bei CdS 233 die Leitfähigkeit durch Cd-Überschuß bzw. durch neutrale Schwefellücken bedingt ist, so kann sich wegen der großen Elektronenaffinität der adsorbierte Sauerstoff in die Schwefellücke der Oberfläche einbauen und das dissoziierte Elektron einfangen. Sauerstoff in Schwefellücken ergibt einen Term, dessen Besetzungswahrscheinlichkeit wesentlich größer ist als jene der undissoziierten Schwefellücken. n_R wird somit durch Einbau von Sauerstoff in der Oberfläche verkleinert. Da $n_H(\text{CdS } 244) > n_H(\text{CdS } 233)$, so können Sauerstoffatome in der Oberfläche der CdS-Kristalle 244 in stärkerem Maße eingebaut werden als in CdS-Kristalle 233, was wiederum bedeutet, daß $\psi_{\text{CdS } 244} > \psi_{\text{CdS } 233}$ ist.

Setzt man die CdS-Oberfläche einer Glimmentladung aus, so werden an der Oberfläche Schwefel ausgebaut und Donatoren erzeugt, die bereits bei Zimmertemperatur völlig dissoziiert sind. Bei sehr starker Beglimmung entsteht sogar ein grauer Oberflächenbelag von Cd. Auch die Dunkelleitfähigkeit wird durch Einwirkung einer Glimmentladung auf die Oberfläche um Größenordnungen erhöht⁶.

Die Kontaktspannungsänderungen sind bei schwacher Beglimmung bei Kristallen CdS 244 größer als bei den Kristallen CdS 233. Da die Kristalle CdS 244 noch kadmiumreicher sind als jene von CdS 233, so wird bei ersteren sich die Änderung in Richtung einer Cd-Anreicherung schneller vollziehen. Durch stärkere Beglimmung werden weitere Donatoren erzeugt und die Austrittsarbeit wird weiter herabgesetzt.

Da nach der Beglimmung eine zusätzliche Belichtung keinen Einfluß auf die Kontaktspannung hat (im Gegensatz zu nichtbeglimmten Kristallen), so kann man annehmen, daß die Oberfläche entartet ist.

Durch die Beglimmung entstehen also an der Oberfläche zusätzlich Donatoren. Die Änderungen der Austrittsarbeit liegen bei 0,1 eV. Nach NIEKISCH⁷ liegt bei CdS das Fermi-Niveau bei 0,1 bis 0,2 eV unterhalb

⁶ FASSBENDER, J.: Der Einfluß einer Glimmentladung auf die Leitfähigkeit von CdS-Einkristallen und die Erzeugung ohmscher Kontakte. *Z. Physik* **145**, 301 (1956).

⁷ NIEKISCH, E.A.: Wechsellichtmethode an photoleitendem CdS als Methode zur Bestimmung von Beweglichkeiten und Haftstellenverteilung. *Ann. d. Phys.* (6) **15**, 288 (1955).

des Leitungsbandes. Eine Verringerung der Austrittsarbeit um 0,1 eV führt dann bereits zur Entartung der Oberfläche. Eine Anreicherungsrandschicht läßt dies zweifellos verstehen.

Sauerstoff erhöht die Austrittsarbeit um 0,15 eV entsprechend einem Akzeptor-Niveau, das 0,15 eV unter dem Fermi-Niveau liegt. Die Bänder werden an der Oberfläche durch Umladung der Terme aufgebogen und zwar so lange, bis das Term-Niveau das Fermi-Niveau erreicht hat. Die Austrittsarbeit bleibt dann konstant, da weitere Terme wegen der zu klein werdenden Besetzungswahrscheinlichkeit nicht umgeladen werden.

Bei beglimmten Kristallen werden dagegen alle Sauerstoffterme umgeladen, ohne daß das Fermi-Niveau erreicht wird. Trotzdem ist die Kontaktspannungsänderung nicht so groß wie bei den nicht beglimmten Kristallen. Elektronen in den Sauerstofftermen ändern aber die Konzentration n_R in der Oberfläche. Bei $n_H = \text{const}$ folgt aus

$$\Delta U_K = \Delta V_D \sim \ln \frac{n_R}{n_H} :$$

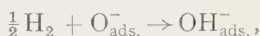
$$\Delta (\ln n_R)_{\text{unbegl.}} > \Delta (\ln n_R)_{\text{begl.}} .$$

Daraus folgt unmittelbar

$$(n_R)_{\text{begl.}} \gg (n_R)_{\text{unbegl.}} .$$

Die Ladungsträgerdichte in der Oberfläche ist bei beglimmten Kristallen also wesentlich größer als bei den unbeglimmten Kristallen.

Wasserstoff hat in Übereinstimmung mit Feldeffektmessungen^{8,9} keinen Einfluß auf die Austrittsarbeit und zwar sowohl bei beglimmten als auch bei nicht beglimmten Kristallen. HEILAND¹⁰ fand an sauerstoffbeladenem ZnO keine Leitfähigkeitsänderung durch eine Wasserstoffbedeckung und macht hierfür die folgende Reaktion verantwortlich¹¹:



d.h. die durch Sauerstoff gebundenen Elektronen werden nicht freigesetzt. Die Randkonzentration und damit V_D bleiben konstant.

Auch beim CdS ist eine Sauerstoffbedeckung wahrscheinlich¹², die auch durch Ausheiztemperaturen von etwa 160° C nur zum Teil

⁸ TETSCH, H.: Feldeffektmessungen an CdS-Einkristallen. Diplomarbeit, Berlin 1960.

⁹ PATSCHEKE, E.: Leitfähigkeitsuntersuchungen von CdS-Einkristallen bei Gamma-Anregung. Diplomarbeit, Berlin 1960.

¹⁰ HEILAND, G.: Zum Einfluß von Wasserstoff auf die elektrische Leitfähigkeit von Zinkoxyd-Kristallen. Z. Physik **148**, 15 (1957).

¹¹ MORRISON, S. R.: Advances in Catalyses, Bd. 7, S. 290. New York: Academic Press 1955.

¹² MUSCHEID, W.: Über den Einfluß von Sauerstoff auf die Leitfähigkeit von CdS-Einkristallen. Ann. d. Phys. **13**, 305 (1953).

abgeheizt werden kann, d.h. Wasserstoff könnte, ohne V_D zu ändern, mit dem Restsauerstoff reagieren.

Durch Wasserdampf (feuchter Stickstoff) wird die Austrittsarbeit der beglimmten und unbeglimmten CdS-Kristalle sprungartig herabgesetzt. Da beim beglimmten CdS die untere Kante des Leitungsbandes in der Nähe des Fermi-Niveaus liegt, dürfte die Austrittsarbeit nur bei nichtbeglimmten Kristallen erniedrigt werden. Es wird vermutet, daß sich an der Oberfläche eine Dipolschicht aus Wasser anlagert. Ob der allmähliche Anstieg der Austrittsarbeit durch Wechselwirkung der Dipolschicht mit Oberflächentermen oder als Folge der Verringerung der Elektronendichte in der Oberfläche zustande kommt, ist nicht entscheidbar.

Die Ergebnisse lassen sich demnach deuten, wenn man an der CdS-Oberfläche Anreicherungsrandschichten annimmt. Die Aussagen über die Änderung der Austrittsarbeit in Abhängigkeit von der Atmosphäre sind nur unter der Voraussetzung zu verstehen, daß sich bei den verschiedenen Behandlungen, insbesondere bei der Beglimmung, das Kristallgefüge nicht in einer Schicht unterhalb der Oberfläche ändert, die dicker als mehrere Atomlagen ist. Die Aussagen setzen darüber hinaus allerdings auch voraus, daß die Kristalle eine hinreichend homogene Dotierung über die gesamte Kristalldicke aufweisen. Die Überlegungen sind dann sicher nicht mehr richtig, wenn sich durch die Behandlung in unmittelbarer Nähe der Oberfläche p - n -Übergänge oder gar Inversionsschichten ausbilden, da in diesen Fällen die Neutralitätsforderung nicht mehr erfüllt ist.

Aus dem Institut für Metallphysik und Metallkunde der Universität des Saarlandes

Zur Theorie des schmelzflüssigen Zustands

Von

MARTIN SIOL

Mit 2 Figuren im Text

(Eingegangen am 5. Mai 1961)

Als maßgebende Ursache der Schmelzumwandlung werden Kristallgitterstörungen betrachtet, die aus gegeneinander versetzten Atompaaren bestehen. Ihre Energie und ihre Wechselwirkung werden elastizitätstheoretisch berechnet, indem diese Gitterstörungen als Grenzfall eines kreisförmigen Versetzungsringes aufgefaßt werden.

Ihre Wechselwirkung bedingt eine kritische Konzentration, die den schmelzflüssigen Zustand kennzeichnet und bei der die einzelnen Atompaare beginnen, sich zu größeren Versetzungsringen zu vereinen.

Für die Schmelztemperatur, die Schmelzentropie und die Volumenänderung am Schmelzpunkt werden Näherungsformeln abgeleitet, die nur die Daten des Idealkristalls enthalten.

Der Vergleich zwischen berechneten und empirischen Werten liefert bei den dichtgepackten Strukturen eine überraschend gute Übereinstimmung, während dies bei den kubisch raumzentrierten Kristallen nur dann der Fall ist, wenn am Schmelzpunkt eine latente Umwandlung in die dichte Packung stattfindet.

Für die Viskosität am Schmelzpunkt wird aus dem Modell eine Näherungsformel abgeleitet, die mit der bekannten Viskositätsformel von ANDRADE hinsichtlich des empirischen Zahlenfaktors nahezu übereinstimmt.

Einleitung

Von den drei Aggregatzuständen der Materie ist der flüssige Zustand als Bindeglied zwischen den beiden Grenzzuständen des geordneten Kristallgitters und des statistisch ungeordneten Gases naturgemäß einer exakten theoretischen Behandlung am wenigsten zugänglich. Insbesondere gilt dies für den Schmelzprozeß, für den es bisher noch nicht gelungen ist, eine befriedigende atomistische Theorie zu entwickeln.

Während in der Nähe des kritischen Punktes eine Flüssigkeit wegen ihrer im Vergleich zum festen Zustand um etwa den Faktor $1/3$ geringeren Dichte näherungsweise noch als stark komprimiertes van der Waalssches Gas angesehen werden darf, ist dies am Schmelzpunkt unzulässig, und es besteht hier demgegenüber eine sehr weitgehende Ähnlichkeit mit dem festen Zustand, die sich beim Schmelzen makroskopisch in dem geringen Verhältnis der Schmelzwärme zur Kristallenergie und den geringfügigen relativen Änderungen der Dichte äußert, die in der Regel nur

wenige Prozent ausmachen. Die Viskosität ist offenbar die einzige Eigenschaft, die beim Schmelzen einer entscheidenden Änderung unterworfen ist.

Eine vernünftige Theorie des Schmelzens sollte daher aus der Theorie der Kristallplastizität hervorgehen. wie FRENKEL¹ schon 1942 bemerkt hat. Wir können heute in Hinblick auf die inzwischen in der Plastizitätstheorie erzielten Fortschritte verschärfend sagen, daß Gitterversetzungen die maßgeblichen Strukturelemente des schmelzflüssigen Zustands sind.

In den bisherigen Versuchen zur Lösung des Schmelzproblems auf der Grundlage einer Gitterfehlordnung wurden insbesondere Gitterlücken und Zwischengitteratome als Fehlordnungselemente eingeführt^{2,3}. In der bekannten Theorie von LENNARD-JONES und DEVONSHIRE wird beispielsweise die thermische Dissoziation eines kubisch dichten Gitters in Gitterlücken und Zwischengitteratome als entscheidend für das Schmelzen angesehen. Unbefriedigend ist in dieser Theorie einmal, daß sie unter vernünftigen Annahmen hinsichtlich des Eigenvolumens der Gitterlücken und Zwischengitteratome eine gegenüber den Beobachtungstatsachen viel zu große Volumenzunahme beim Schmelzen liefert⁴. Andererseits ergeben sich grundsätzliche Schwierigkeiten bezüglich der Viskosität, deren primäre Ursache stets Versetzungswanderungen sein müssen. Bei einer speziellen Art der Versetzungswanderung, dem sog. Klettern (climb), sind Gitterlücken bzw. Zwischengitteratome zwar maßgebend beteiligt, doch sollte dieser Prozeß wegen der erheblich höheren Aktivierungsenergie gegenüber dem Gleiten von Versetzungen im allgemeinen nur eine untergeordnete Rolle spielen. In Übereinstimmung damit steht, daß die empirischen Werte der Aktivierungsenergie der Viskosität wesentlich niedriger liegen als die von den Löchertheorien der Viskosität^{5,6} geforderten Werte⁸.

Gitterversetzungen sind wohl erstmalig von KOCHENDÖRFER⁷, später von MOTT⁸ und von SHOCKLEY⁹ in die Theorie der Viskosität der Flüssigkeiten eingeführt worden. Im Gegensatz zu den Löchertheorien ergeben sich richtige Werte für die Aktivierungsenergie, wenn man eine sehr

¹ FRENKEL, J.I.: Kinetische Theorie der Flüssigkeiten. Berlin 1957 (Vorwort S. V).

² BRESLER, S.E.: Acta physicochim. USSR. **10**, 491 (1939).

³ LENNARD-JONES, J.E., and A.F. DEVANSHIRE: Proc. Roy. Soc. Lond. A **170**, 464 (1939).

⁴ DE BOER, J.: Proc. Roy. Soc. Lond. A **215**, 23 (1952).

⁵ EYRING, H.: J. Chem. Phys. **7**, 391 (1939).

⁶ SCHÄFER, K.: Z. Kolloidchem. **100**, 312 (1942).

⁷ KOCHENDÖRFER, A.: Z. Naturforsch. **3a**, 329 (1948).

⁸ MOTT, N.F.: Proc. Roy. Soc. Lond. A **215**, 4 (1952).

⁹ SHOCKLEY, W.: L'Etat Solide, IX Cons. Solvay, Brüssel 1952, S. 431.

hohe Versetzungsliniendichte, d.h. einen mittleren Versetzungslinienabstand von der Größenordnung der Gitterkonstanten voraussetzt.

Eine eingehendere theoretische Behandlung der Frage, wie es überhaupt zur sprunghaften Bildung einer derartigen dichten Versetzungsstruktur kommt, scheint jedoch bisher nicht vorzuliegen. Im folgenden soll deshalb versucht werden, diese Frage zu beantworten und darüber hinaus quantitative Aussagen über den Schmelzmechanismus abzuleiten.

Das Versetzungsmodell der Schmelze

Wir gehen von folgenden plausiblen Vorstellungen über das Zustandekommen einer dichten Versetzungsstruktur aus. Bekanntlich erreicht die mittlere Amplitude der thermischen Scherwellen am Schmelzpunkt die Größenordnung der theoretischen Scherfestigkeit des Gitters^{10,11}. Überschreitet diese Scheramplitude lokal die Scherfestigkeit, so entsteht in der betreffenden Gleitebene ein Versetzungsring, der nach einer gewissen Lebensdauer wieder in sich verschwindet. Solange bei niederen Temperaturen die mittlere Konzentration solcher thermisch aktivierter Versetzungsringe gering ist, bleibt dabei die Fernordnung des Kristalls erhalten. Bei höheren Temperaturen in der Nähe des Schmelzpunktes wird ihre Konzentration nach dem Energieverteilungssatz schließlich so hoch, daß die gegenseitige Wechselwirkung der Ringe entscheidenden Einfluß gewinnt. Es handelt sich dabei, wie wir im einzelnen noch sehen werden, im wesentlichen um eine thermisch induzierte elastische Dipolwechselwirkung. Da diese stets anziehend wirkt, gibt es eine bestimmte kritische Konzentration, bei deren Überschreiten die Ringe im Mittel nicht mehr in sich verschwinden, sondern zufolge ihrer gegenseitigen Anziehung zu größeren Ringen zusammenfließen, was die Zerstörung der Fernordnung zur Folge hat. Diese kritische Konzentration ist aus später noch ersichtlichen thermodynamischen Gründen gewissermaßen ein oberer Grenzwert und kann als charakteristisches Merkmal des schmelzflüssigen Zustands angesehen werden.

Da der Betrag der gesamten Fehlordnungsenergie des Kristalls exponentiell von der Energie des einzelnen Gitterfehlers abhängt, genügt es, in erster Näherung nur die energetisch niedrigsten durch die Gitterstruktur bedingten Ringkonfigurationen zu berücksichtigen. Im einfachsten Fall der monoatomaren kubisch und hexagonal dichten $A1$ - und $A3$ -Strukturen der reinen Metalle und Edelgase, auf die wir unsere Untersuchungen beschränken wollen, sind dies die in Fig. 1 dargestellten beiden zueinander spiegelbildlichen Konfigurationen, die durch eine

¹⁰ LINDEMANN, F. A.: Phys. Z. **11**, 609 (1910).

¹¹ LEIBFRIED, G.: Z. Physik **127**, 344 (1950).

simultane Verschiebung von zwei benachbarten (in Fig. 1 durch Pfeile markierten) Atomen oberhalb und unterhalb der $\{111\}$ bzw. (0001) Gleitebene zustande kommen.

Derartige durch paarweise Atomversetzungen dargestellte elementare Gitterfehler legen wir den folgenden Untersuchungen zugrunde. Wir werden zunächst versuchen, die Energie dieser zukünftig einfachheits halber als „Atomversetzung“ bezeichneten Konfiguration und ihre Wechselwirkung abzuschätzen. Aus der freien Energie des fehlgeordneten Realkristalls werden wir dann einfache Näherungsformeln für die

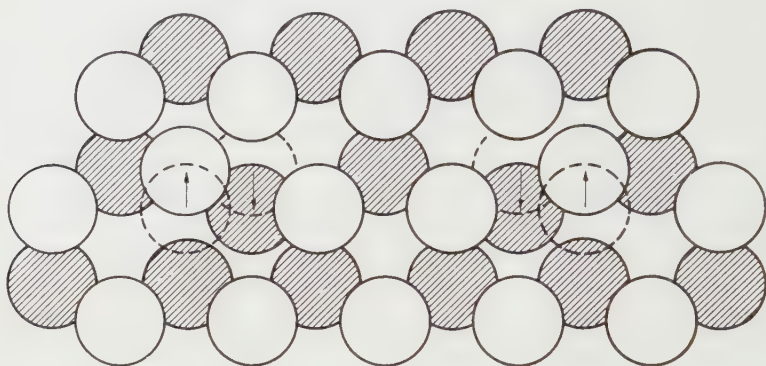


Fig. 1. Modell der Atomversetzung in der $\{111\}$ Gleitebene des kubisch dichten Gitters

Schmelztemperatur, die Schmelzentropie und für die Volumenänderung beim Schmelzen ableiten und die aus den Formeln berechneten Werte mit empirischen Daten vergleichen.

Die Energie thermisch aktivierter Atomversetzungen

Die Schwierigkeiten einer strengen atomistischen Berechnung können wir in folgender Weise umgehen. Wir betrachten die Atomversetzung als Grenzfall eines kreisförmigen Versetzungsringes in einem zunächst isotropen elastischen Kontinuum mit dem Schermodul G und der Poisson-Konstanten μ_p . Die elastische Energie eines Versetzungsringes mit einem in der Ringebene liegenden Burgers-Vektor b , einem Ringradius r und einem gegen r kleinen Versetzungskern-Radius r_i (innerer Abscheideradius) ist nach der linearen Theorie ohne Berücksichtigung der Randbedingungen in r_i ¹²:

$$E_{ea} = \frac{1}{2} \cdot b^2 \cdot G \cdot (1 + \mu_e) \cdot r \cdot \left(\ln \frac{4r}{r_i} - 1 \right); \quad \mu_e \approx \frac{1}{2} \cdot \mu_p \ll 1. \quad (1)$$

¹² LEIBFRIED, G., u. P. HAASEN: Fortschr. Phys. **2**, 92 (1955).

Dazu kommt die innerhalb r_i liegende Energie E_{ei} des Versetzungskerns, die wir nach der nichtlinearen Peierlsschen Theorie abschätzen. Für E_{ei} gilt dann näherungsweise¹³:

$$E_{ei} \approx \frac{1}{2} \cdot b^2 \cdot G \cdot (1 + \mu_e) \cdot r \cdot \left(\ln \frac{r_i}{2w} + 1 \right), \quad (2)$$

wobei w die Versetzungsweite ist ($2w$ ist die Halbwertsbreite der relativen Atomverschiebungen in Gleitrichtung). Die gesamte elastische Energie eines Ringes ist dann:

$$\left. \begin{aligned} E_e = E_{ea} + E_{ei} &\approx A \cdot \varrho \cdot \ln \varrho; & A &\approx \frac{1}{4} \cdot b^2 \cdot w \cdot G \cdot (1 + \mu_e); \\ \varrho &\equiv \frac{2r}{w}. \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

Wir wenden uns nun der für den Schmelzprozeß entscheidenden Frage der Wechselwirkung der Atomversetzungen zu. Wir nehmen an, daß diese rein elastisch bedingt ist und betrachten zunächst einmal die elastische Wechselwirkung zweier Ringe P und P' mit gleichem Radius r . Unter der Voraussetzung, daß ihr Abstand r_a groß gegen ihren Radius r ist und ihre Ringebenen sowie ihre Burgers-Vektoren gleiche Orientierung haben — auf die Begründung dieser Vereinfachung kommen wir später noch zurück —, erhält man nach Formeln von KÖHLER¹⁴ für die vom Ring P in P' und umgekehrt erzeugte Scherspannung in der Ringebene in Richtung von b den Näherungsausdruck:

$$\sigma = \sigma_0 \cdot \Phi; \quad \sigma_0 \approx \frac{b \cdot r^2 \cdot G \cdot (1 + \mu_e)}{4r_a^3}; \quad \Phi \approx (1 - 15 \sin^2 \vartheta \cdot \cos^2 \vartheta \cdot \cos^2 \varphi). \quad (4)$$

Dabei ist ϑ der Winkel zwischen Ringachse und r_a , φ der Winkel zwischen b und der Projektion von r_a auf die Ringebene. Bei einer statistischen Verteilung von P' -Ringern über die Kugeloberfläche im Abstand r_a von P verschwindet im Mittel die Wechselwirkung zwischen P und P' , da:

$$\oint \Phi \cdot \delta \Omega = 0 \quad (\delta \Omega \equiv \sin \vartheta \cdot \delta \vartheta \cdot \delta \varphi) \quad (5)$$

ist. Sie entsteht erst durch eine Störung der statistischen Gleichverteilung durch das elastische Feld. Für die Wechselwirkung pro Ring E_w erhält man:

$$E_w = -\pi r^2 \cdot b \cdot \tilde{\sigma}'; \quad \tilde{\sigma}' = \oint \frac{\sigma' \cdot p \cdot \delta \Omega}{p \cdot \delta \Omega}; \quad p = e^{\frac{\pi r^2 \cdot b \cdot \sigma}{kT}}. \quad (6)$$

Dabei ist σ die von P in P' und σ' die von P' in P erzeugte Scherspannung, p die Störung der Gleichverteilung von P' durch das Feld σ des Ringes P . Setzt man wegen $r_a \gg r$ in erster Näherung:

$$p \approx 1 + \frac{\pi r^2 \cdot b \cdot \sigma}{kT} \quad (7)$$

¹³ SEEGER, A.: Handbuch der Physik, Bd. VII/1, S. 581. 1955.

¹⁴ KÖHLER, J. S.: Phys. Rev. **80**, 436 (1950).

und bildet das Mittel über alle Richtungen ϑ φ , so erhält man als gesamte thermisch induzierte Wechselwirkungsenergie pro Ring bei einer mittleren Anzahl von zwölf Nachbarringen:

$$E_w \approx - \frac{12\pi^2 \cdot b^4 \cdot r^8 \cdot G^2 \cdot (1 + \mu_e) \cdot \tilde{\Phi}^2}{16 \cdot r_a^6 \cdot kT}; \quad \tilde{\Phi}^2 = \frac{8}{7}. \quad (8)$$

Eine Berechnung des Mittelwertfaktors $\tilde{\Phi}^2$ für beliebige Orientierungen des Burger-Vektors und der Gleitebene von P' führt übrigens zu einem nur wenig kleineren Wert von 13/14, so daß die obige Vereinfachung paralleler Orientierung keine große Rolle spielt.

Führt man noch statt r_a die atomare Konzentration der Ringe $c = r_0^3/r_a^3$ (r_0 ist der Atomabstand) ein, so folgt mit Gl. (3) für die Gesamtenergie eines Ringes:

$$E = E_e + E_w = A \cdot [\varrho \cdot \ln \varrho - B \cdot c^2 \cdot \varrho^8]; \quad B \equiv 0,53 \cdot \left(\frac{w}{r_0}\right)^6 \cdot \frac{A}{kT}. \quad (9)$$

Gl. (9) gilt nur bei sehr geringer Konzentration solange $r_a \gg r$ ist. Für den Schmelzmechanismus entscheidend ist aber gerade der Verlauf bei höheren Konzentrationen, dessen genauere Berechnung ziemlich hoffnungslos ist und nur dann Sinn hätte, wenn man nicht nur die energetisch niedrigsten Atomversetzungen, sondern die Gesamtheit aller möglichen Ringradien und Burgers-Vektoren berücksichtigt. In roher Näherung kann man bei der Berechnung der gesamten freien Energie des Kristalls diese höherwertigen Ringe ersetzen durch eine äquivalente Anzahl von Atomversetzungen und hat dann nur hinsichtlich des Entropieanteils die Statistik dahingehend abzuändern, daß man Mehrfachbesetzungen der Gitterpunkte zuläßt. Es sei noch vermerkt, daß dabei auch in etwa die Dissoziation in Gitterlücken und Zwischengitteratome miteinfaßt wird, da man diesen Prozeß durch die gleichzeitige Aktivierung zweier Versetzungsringe mit entgegengesetzt gleichem vollständigen Burgers-Vektor ($b = \pm r_0$) in übereinander liegenden Gleitebenen darstellen kann.

Zu einer rohen summarischen Abschätzung des gesamten Wechselwirkungseinflusses dieser höherwertigen Ringe gelangt man am einfachsten auf folgende Weise. Nach Gl. (9) hat die Gesamtenergie eines Ringes hinsichtlich einer Variation von ϱ bei einer bestimmten kritischen Konzentration c_k einen Maximalwert E_k . Dabei gelten dann die Beziehungen:

$$c_k = \sqrt{\frac{\ln \varrho + 1}{8 \cdot \varrho^7 \cdot B}} = 0,49 \cdot \left(\frac{r_0}{w}\right)^3 \cdot \varrho^{-3} \cdot \sqrt{\ln \varrho \cdot (\ln \varrho + 1)} \cdot \sqrt{\frac{kT}{E_e}}, \quad (10)$$

$$E_k = E(c = c_k) = E_e \cdot (1 - m_k); \quad m_k = \frac{1}{8} \left(1 + \frac{1}{\ln \varrho}\right). \quad (11)$$

Für $c < c_k$ ist $\partial E / \partial \varrho > 0$, d.h. im Mittel wirkt eine zum Ringzentrum gerichtete Kraft, derzufolge jeder Ring nach einer bestimmten Lebensdauer wieder in sich verschwindet. Dagegen würde $c > c_k$ bedeuten, daß infolge der im Mittel nach außen gerichteten Kraft jeder aktivierte Ring unter steter Umwandlung von thermischer Energie in elastische Energie ständig wachsen würde – im Widerspruch zum zweiten Hauptsatz –, wenn nicht gleichzeitig dabei ein elastisches Rückwirkungsfeld $\tilde{\sigma}_r$ entsteht, das die Bedingung $\partial E / \partial \varrho = 0$ erzwingt und ein weiteres Wachstum verhindert. Wir setzen daher für $c > c_k$:

$$E' = E + \pi r^2 \cdot b \cdot \tilde{\sigma}_r; \quad \frac{\partial E'}{\partial \varrho} = 0 \quad (12)$$

und erhalten durch einfache Umformung:

$$E = E_e \cdot \left(1 - m_k \cdot \frac{c^2}{c_k^2}\right); \quad c < c_k, \quad (13a)$$

$$E = E_e \cdot \left(1 - 4m_k + 3m_k \frac{c^2}{c_k^2}\right); \quad c > c_k. \quad (13b)$$

Für c_k werden wir später einen Wert von etwa 0,2 ermitteln, und man kann sich an Hand dessen leicht davon überzeugen, daß Abweichungen von den Näherungsansätzen der Gl. (4) und Gl. (7) bei dieser Konzentration noch keinen allzugroßen Einfluß haben können.

Im ganzen erhält man nach dieser rohen Abschätzung eine Abhängigkeit der Ringenergie von der Konzentration, wie sie in Fig. 2 die ausgezogene Kurve zeigt, mit einem scharfen Minimum bei c_k .

Zur vollständigen Bestimmung der Energie einer Atomversetzung nach Fig. 1 müssen wir nun dem Ringradius r bzw. ϱ einen strukturell bedingten Wert beimessen, den wir folgendermaßen bestimmen. Für sehr große kreisförmige Ringe in der $\{111\}$ bzw. (0001) Ebene ist zunächst der Radius gegeben durch:

$$\varrho_n \equiv \frac{2r}{w} = \frac{2}{w} \cdot \sqrt{\frac{n \cdot f_0}{\pi}}; \quad f_0 = \frac{\sqrt{3}}{2} r_0^2; \quad \varrho_n = 1,06 \cdot \sqrt{n} \cdot \frac{r_0}{w}, \quad (14)$$

wobei n die Anzahl der versetzten Atome einer Gleitebene und f_0 die äquivalente Fläche eines Atoms ist. Der kleinstmögliche Radius, für

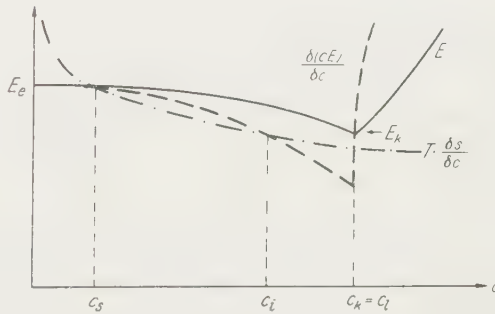


Fig. 2. Konzentrationsabhängigkeit der Energie einer Atomversetzung nach Fig. 1

den die Ringenergie mit $n \rightarrow 0$ verschwindet, ist aber nicht $\varrho = 0$, sondern nach Gl. (3) $\varrho_{\min} = 1$. Andererseits ist durch die Versetzungsweite w ein minimaler Grenzradius $r'_{\min} = w$ bzw. $\varrho'_{\min} = 2$ bestimmt¹³, was bisher in dem Näherungsausdruck Gl. (3) der Einfachheit wegen unberücksichtigt blieb. Wir machen daher für die Atomversetzung gewissermaßen als Kompromißlösung den asymptotischen Näherungsansatz:

$$\varrho \approx \sqrt{\varrho_{\min} \cdot \varrho'_{\min} + \varrho_n^2} \approx \sqrt{2 + \varrho_n^2}. \quad (15)$$

In der Peierlsschen Theorie ist die Weite einer Stufenversetzung $w = d/(1 - \mu_p)$, die einer Schraubenversetzung $w = d$, und somit die mittlere Weite für einen Ring $w \approx d(1 + \frac{1}{2}\mu_p)$, wobei d der halbe Gleitebenenabstand ist. Für die Atomversetzung wird dann mit $d = r_0/\sqrt{6}$ und $n = 1$ und den Gln. (14) und (15):

$$w \approx \frac{r_0}{\sqrt{6}} \cdot (1 + \mu_w); \quad \varrho \approx 3,0 \cdot (1 - 0,8 \cdot \mu_w); \quad \mu_w \approx \frac{1}{2} \mu_p. \quad (16)$$

Zur späteren Unterscheidung von μ_e in Gl. (3) haben wir hier den Einfluß der Poisson-Kontraktion auf die Versetzungsweite mit μ_w bezeichnet. Wir setzen nun noch für den Burgers-Vektor den Wert $b = r_0/\sqrt{3}$ und für r_0 das Atomvolumen $v = r_0^3/\sqrt{2}$ in die Formeln Gln. (3), (9), (10), (11) ein, und erhalten schließlich:

$$\left. \begin{aligned} E_e &\approx 0,16 \cdot v \cdot G \cdot (1 + \mu_e - 0,5 \mu_w) \\ m_k &\approx 0,24 \cdot (1 + 0,3 \mu_w); \quad c_k \approx \sqrt{\frac{kT}{v \cdot G}} \cdot (1 - 0,5 \mu_e - \mu_w). \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

Unsere bisherigen Betrachtungen gelten für einen isotropen Kristall unter den speziellen Voraussetzungen der Peierlsschen Theorie, und wir müssen nun noch die möglichen Abweichungen durch bisher nicht berücksichtigte Einflüsse erfassen. Wir gehen dabei so vor, daß wir in Analogie zur Poisson-Konstanten in den Gl. (17) μ_e bzw. μ_w durch eine Summe von einzelnen Korrekturgrößen erweitern, je nachdem sie unmittelbar in die Energie oder die Versetzungsweite eingehen. Es handelt sich dabei im wesentlichen um folgende Einflüsse:

Anisotropie. Da die strenge Erweiterung der Energieberechnung auf den anisotropen Fall im Rahmen des allgemeinen Näherungscharakters unserer Untersuchungen wenig Sinn hat, beschränken wir uns darauf, die Anisotropie dadurch zu berücksichtigen, daß wir für G den in der Gleitebene in Richtung des Burgers-Vektors geltenden Schermodul $G = \frac{1}{3}(C_{11} - C_{12} + C_{44})$ für A 1-Gitter bzw. $G = C_{44}$ für A 3-Gitter und entsprechend für die Poisson-Konstante $\mu_p \approx \frac{1}{2}(1 - G/K)$ setzen, wobei K der Kompressionsmodul ist. Der Fehler gegenüber einer strengen

Rechnung dürfte dabei auch bei starker Anisotropie in ziemlich engen Grenzen liegen¹⁵.

Kompressibilität. In der Peierlsschen Theorie der Stufenversetzung bleibt die Kompressibilität in der Gleitzone zwischen den beiden benachbarten Atomenebenen unberücksichtigt, was an sich nur bei vollkommen flexibler Gleitzone statthaft wäre. Bei Versetzungsringen, deren Durchmesser nicht wesentlich über dem Atomabstand liegt, ist jedoch eher mit einem starren Verhalten der Gleitebene zu rechnen. In diesem Fall herrscht innerhalb der Zone eine Dehnung ε_{xx} in Gleitrichtung mit folgender Abhängigkeit vom Abstand x in Gleitrichtung und vom Abstand y senkrecht zur Gleitebene¹⁶:

$$\varepsilon_{xx} = \frac{b \cdot w \cdot y}{2\pi \cdot (x^2 + w^2) \cdot d} \quad (18)$$

und damit eine Kompressionsenergie pro Versetzungslinieneinheit von:

$$E_p \approx \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-d}^{+d} \varepsilon_{xx}^2 \cdot \delta y \cdot \delta x = \frac{b^2 \cdot d \cdot C_b}{24 \cdot \pi \cdot w} \quad (19)$$

Dabei ist C_b der (lineare) Kompressionsmodul in b -Richtung. In Hinblick auf die Strukturstörung im Versetzungskern setzen wir für C_b näherungsweise den quasiisotropen Wert $C_b \approx K + \frac{4}{3}G$ ein und erhalten dann für den relativen Anteil der Kompressionsenergie an E_e bzw. für den entsprechenden Korrekturfaktor μ_k :

$$\mu_k = \frac{E_p \cdot \pi v}{E_e} \approx 0,07 \cdot \left(\frac{K}{G} + \frac{4}{3} \right). \quad (20)$$

Nichtlinearität. Es handelt sich hierbei um die Abweichungen gegenüber der in der Peierlsschen Theorie vorausgesetzten Sinusbeziehung zwischen Scherspannung und Verschiebung in der Gleitzone, bzw. um die Nichtlinearität der Kompressibilität im Versetzungskern. Beide Effekte bewirken in erster Linie eine Vergrößerung der Versetzungsweite w , weniger eine Energieerhöhung des Versetzungskerns, da die in der Gleitzone gespeicherte Energie unabhängig vom speziellen Verlauf der Scherspannungsfunktion¹⁷ ist. Eine Abschätzung dieser Anteile ist recht schwierig, zumal die speziellen Bindungsverhältnisse, insbesondere Valenzkräfte eine ausschlaggebende Rolle spielen. Wir berücksichtigen diese nichtlinearen Effekte durch eine eventuell empirisch erfaßbare Korrektur der Versetzungsweite und setzen $\mu_w = \frac{1}{2}\mu_p + \mu_n$.

¹⁵ FOREMAN, A. J. E., and W. M. LOMER: Phil. Mag. **46**, 73 (1955).

¹⁶ LEIBFRIED, G.: u. K. LÜCKE: Z. Physik **126**, 459 (1949).

¹⁷ NABARRO, F. R. N.: Adv. Physics **1**, 360 (1952).

Stapelfehler. Bei Versetzungsringen mit unvollständigem Burgersvektor, wie auch bei der Atomversetzung nach Fig. 1, liefert der Stapelfehler der Ringfläche einen zusätzlichen Energiebeitrag E_s . Bezeichnet man mit γ_s das Verhältnis der Gitterenergiedifferenz pro Volumen zwischen $A3$ - und $A1$ -Gitter zum Schermodul der Gleitebene G , dann gilt für die Stapelfehlerkorrektur, die wir mit μ_s bezeichnen, annähernd:

$$\mu_s = \frac{E_s}{E_e} \approx \frac{4d \cdot \pi r^2 \cdot G \cdot \gamma_s}{0,16 \cdot G \cdot v} \approx 17 \cdot \gamma_s. \quad (21)$$

Es ist hierzu noch zu bemerken, daß die auf die Energie wirkenden Anteile μ_k und μ_s nicht oder nur sehr schwach in die Wechselwirkung eingehen. An Stelle der Gl. (13) haben wir dann

$$E = E_e \cdot \left(1 + \mu_k + \mu_s - m_k \cdot \frac{c^2}{c_k^2} \right) \quad (22)$$

und in den Gl. (17)

$$\mu_e = \frac{1}{2} \mu_p \approx \frac{1}{4} \left(1 - \frac{G}{K} \right); \quad \mu_w = \frac{1}{2} \mu_p + \mu_n \quad (23)$$

zu setzen. Die Energien E für $c/c_k = 0$ bzw. für $c/c_k = 1$ bezeichnen wir dann mit E_0 bzw. mit E_1 .

Ableitung von Näherungsformeln für den Schmelzpunkt

Zur Berechnung der Schmelztemperatur T_m , der Schmelzentropie ΔS_m und der Volumenänderung am Schmelzpunkt $\Delta v_m/v_{ms} \equiv \Delta \varepsilon_m$ gehen wir von der molaren freien Energie F eines Realkristalls aus, der eine bestimmte Konzentration c von Atomversetzungen als maßgebliche Gitterfehler im thermischen Gleichgewicht enthält. Der Index m beziehe sich im folgenden stets auf den Schmelzpunkt, die Indices s und l auf den festen und flüssigen Zustand. Außerdem soll noch vorausgesetzt werden, daß keine äußeren Kräfte auf den Kristall wirken und insbesondere der Dampfdruck zu vernachlässigen ist. Die freie Energie ist dann gleich der freien Enthalpie.

Die Energiedifferenz zwischen Real- und fehlerfreiem Idealkristall ist:

$$\left. \begin{aligned} F = c \cdot E - T \cdot S; \quad S = R \cdot \left[c \cdot \ln \frac{z}{c} + (z + c) \cdot \ln \left(1 + \frac{c}{z} \right) \right] \\ \approx R \cdot c \cdot \left[\ln \frac{z}{c} + 1 + \frac{c}{z} \right]; \quad c \ll z. \end{aligned} \right\} \quad (24)$$

S ist darin die Mischungsentropie bei mehrfacher Besetzungsmöglichkeit pro Gitterpunkt, R die Gaskonstante, z ist eine Konfigurationszahl, die gleich dem Produkt $z_0 \cdot z_k$ der Zahl z_0 der verschiedenen Orientierungsmöglichkeiten eines Versetzungsringes und der Zahl z_k der auf ein Atom bezogenen energetisch gleichwertigen Konfigurationsmöglichkeiten eines Ringes bei vorgegebener Orientierung ist. Bei einer Atom-

versetzung nach Fig. 1 ist $z_k=2$ und $z_0=3$ für das hexagonale bzw. $z_0=12$ für das kubisch dichte Gitter. Es muß jedoch damit gerechnet werden, daß mit steigender Temperatur und Konzentration infolge der Wechselwirkung vor allem zwischen den Atomversetzungen und den thermischen Wellen ein allmählicher Abfall der Orientierungszahl z_0 auf den Wert 1 erfolgt. Wir werden daher im Rahmen unserer Untersuchungen wohl keinen allzu großen Fehler begehen, wenn wir in Betracht der hohen Amplituden der thermischen Wellen am Schmelzpunkt generell $z_0=1$ und damit $z=z_k=2$ setzen. Anschaulich bedeutet dies eine mehr oder weniger ausgeprägte Schwarmbildung von gleich-orientierten Atomversetzungen.

Wir bestimmen nun die Konzentration c im thermischen Gleichgewicht. Es gilt dann wegen der Minimalforderung für F die Gleichung:

$$\frac{\partial F}{\partial c} = \left(E + c \cdot \frac{\partial E}{\partial c} \right) - RT \cdot \left(\ln \frac{z}{c} + \frac{2c}{z} \right) = 0. \quad (25)$$

Für wechselwirkungsfreie Gitterfehler liefert dies für $c \ll z$ den bekannten Ausdruck für c bzw. für F :

$$c = z \cdot e^{-\frac{E_0}{RT}}; \quad F = -RT \cdot c. \quad (26)$$

Hinsichtlich des Anteils der einer Wechselwirkung nach Gl. (13) unterworfenen Atomversetzungen erkennt man zunächst rein qualitativ an Hand der Fig. 2, in der die gestrichelte Kurve den ersten Klammerausdruck von Gl. (25), die strichpunktierte Kurve den Mischungsentropieanteil von Gl. (25) darstellt, daß innerhalb eines bestimmten Temperaturbereichs zwischen einer minimalen Unterkühlungstemperatur T_{lu} und einer maximalen Überhitzungstemperatur $T_{sü}$ Gl. (25) drei Lösungen c_s, c_i, c_l besitzt, von denen man c_s der stabilen festen Phase, c_l der stabilen flüssigen Phase und c_i einem instabilen Zustand zuschreiben kann. Die Annahme eines scharfen Knickes der Energiekurve E bei c_k hat, wie man aus Fig. 2 sofort erkennt, zur Folge, daß unabhängig von der Mischungsentropie die Gleichgewichtskonzentration in der flüssigen Phase c_l gleich der kritischen Konzentration c_k ist.

Zu diesen Atomversetzungen der kritischen Konzentration kommt in der flüssigen Phase noch der Anteil höherer Versetzungskonfigurationen, die unter anderem auch das Rückwirkungsfeld $\tilde{\phi}$, erzeugen. Ihre Gesamtheit ersetzen wir näherungsweise durch eine äquivalente Konzentration c'_l von wechselwirkungsfreien Atomversetzungen.

Die Schmelztemperatur ergibt sich definitionsgemäß aus der Phasenkoexistenzbedingung $F_{lm} = F_{sm}$, die mit Gl. (24) folgendermaßen lautet:

$$\Delta F = E_1 \cdot c_k - RT \cdot c_k \cdot \left(\ln \frac{2}{c_k} + 1 + \frac{c_k}{2} \right) - RT \cdot c_0 = 0; \quad c_0 \equiv c'_l - c_s. \quad (27)$$

Eine erste Näherung für T_m bekommt man leicht, wenn man in den Gln. (17), (22), (27) $\mu = 0$ und $c_0 = 0$ setzt, nämlich:

$$RT_m = 0,22 \cdot E_0 = 0,035 \cdot v_m G_m; \quad c_k = 0,19; \quad c_s = 0,022. \quad (28)$$

Zur Abschätzung von c_0 berechnen wir die Energiedifferenz ΔE_0 einer Atomversetzung zwischen flüssiger und fester Phase aus der Volumenabhängigkeit von (vG) und setzen mit Rücksicht auf Gl. (28):

$$\left. \begin{aligned} c_0 &\equiv c'_l - c_s = c_s \cdot \frac{\Delta E_0}{RT_m} = c_s \cdot \frac{E_0}{RT_m} \cdot e \cdot \Delta \varepsilon_m \approx 0,1 \cdot e \cdot \Delta \varepsilon_m \\ e &\equiv - \frac{v \cdot \partial E_0}{E_0 \cdot \partial v} \Big|_T = \frac{\partial (vG)}{G \cdot \partial v} \Big|_T = g_p \cdot \frac{K}{G} - 1; \quad g_p = \frac{\partial G}{\partial p} \Big|_T \end{aligned} \right\} \quad (29)$$

Darin ist $\Delta \varepsilon_m$ die Volumenänderung beim Schmelzen, e der Volumenkoeffizient bzw. g_p der Druckkoeffizient des Schermoduls G .

Insbesondere ist dazu noch Folgendes zu bemerken. Die Energie E der Gitterfehler in der festen Phase und auch die der Atomversetzungen im kritischen Zustand und damit auch die Schmelztemperatur nach Gl. (28) ist durch den Schermodul des Idealkristalls und nicht durch den des Realkristalls bestimmt. Die Energieverminderung im dilatierten Realkristall infolge der Volumenabhängigkeit des Schermoduls wird nämlich genau kompensiert durch die von den Gitterfehlern zu leistende Dilatationsarbeit. Eine solche Dilatation des Kristallgitters ist in elastischen Medien bekanntlich eine Folge der Oberflächenrandbedingung $p=0$ und verschwindet in viskosen Medien¹⁸, d.h. in der Schmelze berechnet sich die Bildungsenergie der Gitterfehler aus dem Schermodul des Realkristalls.

Behandelt man die μ und c_0 in Gl. (27) als kleine Störung, so erhält man für die Schmelztemperatur in zweiter Näherung den folgenden Ausdruck:

$$RT_m \approx 0,035 \cdot v_m \cdot G_m \cdot (1 + 1,5 \mu_k + 1,5 \mu_s + \mu_e - 0,8 \mu_w - 1,8 \cdot c_0). \quad (30)$$

Extrapoliert man noch den Wert $v_m G_m$ am Schmelzpunkt aus seinem Wert $v_r G_r$ bei Raumtemperatur T_r mit Hilfe des Temperaturkoeffizienten g_T des Schermoduls und dem thermischen Ausdehnungskoeffizienten β , so erhält man für T_m explizite:

$$T_m = \frac{T_{mr} \cdot (1 + t \cdot T_r)}{(1 + t \cdot T_{mr})}; \quad t \equiv - \frac{\partial (v \cdot G)}{v G \cdot \partial T} \Big|_p = g_T - \beta; \quad g_T \equiv - \frac{\partial G}{G \partial T} \Big|_p, \quad (31)$$

wobei T_{mr} der nach Gl. (30) mit den Raumtemperaturdaten $v_r \cdot G_r$ berechnete Wert von T_m ist.

Die Entropiedifferenz ΔS_m am Schmelzpunkt folgt aus Gl. (27) durch Ableitung von ΔF nach T unter Beachtung der Temperatur-

¹⁸ ESHELBY, J.D.: Acta metallurg. 3, 487 (1955).

abhängigkeit von c und E . Man erhält zunächst:

$$\Delta S_m = \frac{E_{10} \cdot c_k}{T_m} \cdot \left[1 + \frac{E_0 \cdot c_0}{E_1 \cdot c_k} - \frac{1}{2} \left(1 - \frac{c_k}{2} + \frac{c_0}{c_k} \right) \cdot \frac{R T_m}{E_1} \right]. \quad (32)$$

E_{10} ist darin die auf den absoluten Nullpunkt extrapolierte Gitterfehlerenergie E_1 . Mit Hilfe der Gl. (17), (22), (30) kann man noch (für kleine μ , c_0) c_k , T_m , E_0 und E_1 eliminieren und erhält in erster Näherung:

$$\Delta S_m \approx 0,56 \cdot R \cdot (1 + 0,6\mu_k + 0,6\mu_s - \mu_w + 8c_0) \cdot \frac{(1 + t \cdot T_r)}{[1 - t(T_m - T_r)]} \quad (33)$$

Zu Gl. (33) ist noch zu bemerken, daß für $t=0$ Gl. (33) den Mischungs-entropieanteil entsprechend dem zweiten Summanden von Gl. (27) liefert. Die Schwingungsentropieänderung beim Schmelzen wird dann durch den Temperaturgang von vG bestimmt.

Die Volumenänderung am Schmelzpunkt erhält man am einfachsten mit Hilfe der Clausius-Clapeyronschen Beziehung aus Gl. (30), (31):

$$\Delta \varepsilon_m = \frac{\Delta Q_m \cdot \delta T_m}{v_m \cdot T_m \cdot \delta p} = \frac{\Delta Q_m \cdot \left(g_p - \frac{G_m}{K_m} \right)}{v_r \cdot G_r \cdot (1 + t \cdot T_r)} \approx \frac{\Delta Q_m \cdot e}{v_r \cdot K_r \cdot (1 + t \cdot T_r)}. \quad (34)$$

Dabei ist $\Delta Q_m = T_m \cdot \Delta S_m$ die Schmelzwärme. In Gl. (34) ist der Unterschied in den Temperaturkoeffizienten von G und K vernachlässigt, da eine empirische Prüfung der Formel wegen der Unsicherheit in den experimentellen Werten von g_p bzw. e und deren Temperaturgang sowieso nur in ziemlichen Fehlergrenzen möglich ist.

Vergleich zwischen empirischen und berechneten Schmelzpunktdaten

In den Formeln Gl. (30) bis (34) sind lediglich die elastischen Kristalldaten enthalten. Eine empirische Prüfung ist jedoch vorerst wegen der recht lückenhaften Kenntnis der Temperatur- bzw. Druckkoeffizienten der elastischen Moduln schwierig. Eine erhebliche Unsicherheit besteht überhaupt in der experimentellen Bestimmung der wahren unrelaxierten Werte am Schmelzpunkt und zwar speziell wegen der bei hohen Temperaturen sehr stark ins Gewicht fallenden Relaxationserscheinungen der Versetzungsstruktur, die den Schermodul herabsetzen und einen zu hohen Temperaturkoeffizienten vortäuschen können. Die einzigen empirischen Bestimmungen der Druckabhängigkeit der kompletten C_{ik} wurden an Cu, Ag, Au vorgenommen^{19, 20}, wobei die Unsicherheit zum Teil eine Größenordnung erreicht.

Der bequemste und sicherste Weg für eine einigermaßen zuverlässige Bestimmung des Volumenkoeffizienten e des Schermoduls ist

¹⁹ LAZARUS, D.: Phys. Rev. **76**, 545 (1949).

²⁰ DANIELS, W.B.: Phys. Rev. Letters **1**, 43 (1958).

der über die Debye-Frequenz bzw. die Grüneisenkonstante. Da der polikristalline Mittelwert des Schermoduls nicht allzusehr von dem der $\{111\}$ Gleitebene abweicht, dürfte dies auch ebenso für die e -Werte gelten. Wir setzen für die Debye-Frequenz ν und für die Grüneisen-Konstante γ :

$$\nu \sim v^{-1} \cdot \left(\frac{v \cdot G}{M} \right)^{\frac{1}{2}}; \quad \gamma \equiv - \frac{v \cdot \partial v}{v \cdot \partial v} \approx \frac{1}{2} \cdot e + \frac{1}{3}. \quad (35)$$

Darin ist M das Atomgewicht. Der nicht berücksichtigte Einfluß des Kompressionsmoduls bzw. der longitudinalen Wellen wird dabei in etwa

Tabelle 1. Experimentelle und berechnete Schmelzpunktdaten von Metallen

	Cu	Ag	Au	Al	Ni	Pb	Na*	Fe	Mg
1. $G_r v_r$. . .	69	62	58	59	118	31	14	120	54
2. $K_r v_r$. . .	225	225	403	186	284	179	38	292	110
3. $g_T \cdot 10^3$. .	0,37	0,44	0,34	0,63	0,30**	1,1	1,1	0,35**	0,60
4. $\beta \cdot 10^6$. . .	50	57	43	69	41	87	150	37	77
5. e	3,1 (2,9)	3,6 (3,9)	5,1 (5,2)	3,6	3,2	4,5	1,2	2,9	2,2
6. μ_p	0,34	0,36	0,42	0,34	0,28	0,40	0,32	0,30	0,26
7. μ_h	0,32	0,35	0,58	0,31	0,26	0,50	0,28	0,26	0,24
8. μ_s	0,10	0,04	0,03	0,14	—	—	—	—	—
9. T_m [°K] . .	1356	1235	1337	932	1726	600	371	1806	923
10. $\Delta S_m/R$. .	1,14	1,10	1,17	1,34	1,22	1,00	0,85	1,00	1,13
11. $\Delta \varepsilon_m$ [%] .	4,2	3,8	5,1	6,5	—	3,5	2,5	2,6	4,2
12. $T_m(\mu_s=0)$	1260	1130	1320	950	1780	630	290	1700	900
13. T_m	1340	1160	1330	1030	1900	—	(360)	(1820)	—
14. $S_m/R(\mu_s=0)$	1,05	1,09	1,20	1,23	1,08	1,27	0,86	1,20	1,04
15. S_m/R . . .	1,11	1,11	1,22	1,32	1,16	—	—	—	—
16. $v_0 G_0 / v_m G_m$	1,68	1,71	1,58	1,83	1,72	1,84	1,50	2,00	1,70
17. $\Delta \varepsilon_m$ [%] .	3,9	3,9	3,6	4,2	4,4	2,3	1,8	3,3	3,6

* Werte bei 90° K. — ** Polikristalliner Mittelwert.

kompensiert durch die in unseren Formeln ebenfalls nicht berücksichtigte Druckabhängigkeit der Korrektur μ_h . Für den Volumenkoeffizienten e gilt dann folgende Formel, wenn man statt γ noch die bekannte Beziehung $\gamma \approx \beta \cdot v K / 3 R$ für verschwindende Nullpunktsenergie einsetzt:

$$e \approx 2 \cdot \left(\frac{\beta \cdot v K}{3 R} - \frac{1}{3} \right). \quad (36)$$

In Tabelle 1 sind alle für die Berechnung benötigten elastischen und thermischen Daten der kubischen und hexagonalen Metalle, soweit vorhanden, zusammengestellt. Zeile 1 enthält die auf das Molvolumen bezogenen Werte des Schermoduls $v_r G_r$ und zwar $\frac{1}{3} v (C_{11} - C_{12} + C_{44})$ für kubische Metalle bzw. $v C_{44}$ für Mg in kcal/mol bei 20° C, Zeile 2 den isothermen Kompressionsmodul ebenfalls in kcal/mol bei 20° C. In

Zeile 3 stehen die Werte g_T des Temperaturkoeffizienten von G . Die Werte sind einem Bericht von HUNTINGTON²¹ bzw. den dort aufgeführten Originalarbeiten entnommen. Die Werte für Na gelten bei 90° K, die g_T -Werte von Ni und Fe sind polikristalline Mittelwerte nach FREDERICK²² und wurden mit Rücksicht auf den magnetischen ΔE -Effekt aus dem Verlauf oberhalb des Curie-Punktes ermittelt. Zeile 4 enthält den thermischen Ausdehnungskoeffizienten β bei 20° C nach PEARSON²³ und schließlich Zeile 5 den nach Gl. (36) berechneten Volumenkoeffizienten e des Schermoduls. Die in Klammern stehenden experimentellen Werte von DANIELS²⁰ zeigen eine recht gute Übereinstimmung, wie man sieht. In Zeile 6 steht die nach Gl. (23) berechnete Poisson-Konstante μ_p , in Zeile 7 die Korrektur μ_h nach Gl. (20) und in Zeile 8, soweit bekannt, die mit γ_s -Werten von SEEGER²⁴ nach Gl. (21) ermittelte Stapelfehlerkorrektur μ_s . Zeile 9 bis 11 enthält die empirischen Werte der Schmelztemperatur T_m in °K, die Schmelzentropie $\Delta S_m/R$ in R -Einheiten und die relative Volumenänderung am Schmelzpunkt $\Delta \epsilon_m$ in %²⁵.

In Zeile 12 haben wir nun die nach Gl. (30), (31) berechneten Schmelztemperaturen eingetragen, und zwar ohne, in Zeile 13 mit Berücksichtigung von μ_s . Es zeigt sich durchweg eine überraschend gute Übereinstimmung mit den empirischen Werten der Zeile 9. An Einzelheiten ist zu bemerken, daß für Al und Ni $\mu_s = 0$ bessere Werte liefert, was durch einen starken Abfall von μ_s mit steigender Temperatur bedingt sein könnte (μ_s in Zeile 9 gilt für $T = 0$).

Eine besondere Erklärung erfordern die beiden kubisch raumzentrierten Metalle Na und Fe. Die Rechnungswerte der Zeile 12 sind unter der Annahme kubisch dichter Packung mit den elastischen Daten des raumzentrierten Gitters ermittelt. Die befriedigende Übereinstimmung von T_m wäre hiernach ein recht deutlicher Beweis, daß die raumzentrierten Metalle beim Schmelzen latent in eine kubisch dichte Grundstruktur transformieren, in Übereinstimmung mit den Ergebnissen neuerer röntgenographischer Strukturuntersuchungen von Metallschmelzen²⁶. Im $A2$ -Gitter liegen die energetisch niedrigsten Atomversetzungen in der $\{110\}$ Ebene mit einem Burgers-Vektor in $\langle 111 \rangle$ -Richtung vom Betrage $b = r_0$, und man würde damit viel zu hohe Werte für T_m erhalten. Andererseits ist z.B. bei Fe die Umwandlungswärme und Volumenänderung bei der γ - δ -Umwandlung klein gegen die Schmelz-

²¹ HUNTINGTON, H.B.: Solid State Physics **7**, 322 (1958).

²² FREDERICK, J.R.: Diss. Univ. Michigan 1947.

²³ PEARSON, W.B.: Handbook of Lattice Spacings and Structures of Metals and Alloys. London 1958.

²⁴ SEEGER, A., R. BERNER u. H. WOLF: Z. Physik **155**, 255 (1959).

²⁵ SMITHELLS, C.J.: Metals Reference Book. London 1955.

²⁶ RICHTER, H., u. S. STEEB: Z. Metallkde. **50**, 369 (1959).

wärme bzw. das Schmelzvolumen und daher nur von geringfügigem Einfluß auf die Schmelzpunktdaten. Eine Umrechnung des Schermoduls auf das kubisch dichte Gitter gleichen Zellvolumens mit Hilfe der Gittertheorie²⁷ liefert übrigens eine noch bessere Übereinstimmung, wie die eingeklammerten Werte zeigen.

Zeile 14 und 15 enthält die nach Gl. (33) berechneten Schmelzentropien ohne und mit Berücksichtigung von μ_s . Wie man sieht, ist die Übereinstimmung mit den empirischen Werten der Zeile 10 auch hier überraschend gut. Zu bemerken ist, daß die Werte mit μ_s auch für Al und Ni besser liegen, da für die Entropie nach Gl. (32) die Energie für $T=0$ maßgebend ist. Auffallend ist weiterhin, daß die Rechnung für Pb und Fe merklich zu hohe Entropiewerte liefert. Dies könnte daran liegen, daß die Korrektur μ_n infolge von Valenzkräften hier nicht zu vernachlässigen ist. Genauer lässt sich allerdings nicht sagen, solange die Stapelfehlerenergien von Pb und γ Fe nicht bekannt sind.

In Zeile 16 sind noch die Werte des t enthaltenden Faktors $v_0 G_0 / v_m G_m = (1 + t T_r) / [1 - t(T_m - T_r)]$ der Gl. (33) aufgeführt. Danach teilt sich die gesamte Schmelzentropie etwa zu gleichen Teilen auf in Mischungsentropie- und Schwingungsentropieänderung. Es sei an dieser Stelle kurz darauf hingewiesen, daß auch hinsichtlich der Änderung des elektrischen Widerstandes beim Schmelzen eine entsprechende Aufteilung in Schwingungsanteil und Streuanteil der Gitterfehler gilt, und nicht nur der Schwingungsanteil zu berücksichtigen ist, wie es in der bekannten Theorie von MOTT geschieht²⁸.

In Zeile 17 stehen die nach Gl. (34) berechneten relativen Volumenänderungen am Schmelzpunkt $\Delta \varepsilon_m$. Der Vergleich mit den Werten der Zeile 11 läßt ebenfalls eine befriedigende Übereinstimmung erkennen, obwohl hier die Unsicherheit erheblich größer ist, da genaue empirische Daten der Druck- bzw. Volumenkoeffizienten ϵ und vor allem auch ihrer Temperaturabhängigkeit fehlen.

Die Viskosität der Metallschmelzen

Abschließend möge noch kurz untersucht werden, wie sich unser Modell in bezug auf die Viskosität des schmelzflüssigen Zustands bewährt. Nach der vorliegenden Theorie sind in der Schmelze die Atomversetzungen in einem gewissen „embrionalen“ Gleichgewicht, ein äußeres Spannungsfeld hat eine ständige Aktivierung einsinnig gerichteter Atomversetzungen zur Folge, die zu größeren Versetzungsringen zusammenfließen und ein Abgleiten in Richtung des äußeren Scherfeldes bewirken. Die Viskosität läßt sich dann in folgender Weise abschätzen.

²⁷ LEIBFRIED, G.: Handbuch der Physik, Bd. VII/1, S. 231. 1955.

²⁸ MOTT, N.F.: Proc. Roy. Soc. Lond. A **146**, 465 (1934).

Da die von einem Versetzungsring bewirkte Abgleitung gleich dem auf das Volumen bezogenen Produkt aus Burgers-Vektor und Ringfläche ist, erhält man für die Abgleitgeschwindigkeit:

$$\dot{\epsilon} = \frac{\pi r^2 \cdot b}{v} \cdot a \cdot \dot{p}. \quad (37)$$

Darin ist \dot{p} die Aktivierungswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit und Zellvolumen einer Atomversetzung und a ein Mittelwertfaktor, der die statistische Richtungsverteilung berücksichtigt und der nach einer rohen Abschätzung etwa den Wert 4/5 hat. Für \dot{p} setzen wir gemäß dem Verteilungsgesetz für verschwindend kleines äußeres Feld σ :

$$\left. \begin{aligned} \dot{p} &= z \cdot \nu \cdot \left(e^{\frac{-E_1 + \pi r^2 \cdot b \cdot \sigma}{kT}} - e^{\frac{-E_1 - \pi r^2 \cdot b \cdot \sigma}{kT}} \right) \approx \frac{2\pi \cdot z \cdot \nu \cdot r^2 \cdot b \cdot \sigma}{kT} \cdot e^{\frac{-E_1}{kT}}; \\ \nu &= \frac{1}{2\pi \cdot d} \sqrt{\frac{v \cdot G}{M}} \end{aligned} \right\} \quad (38)$$

Dabei ist ν die Grenzfrequenz der thermischen Scherwellen mit senkrecht zur Gleitebene stehenden Wellenvektor, z wie bisher die Konfigurationszahl und M das Atomgewicht. Außerdem soll vorausgesetzt werden, daß die Aktivierungsenergie gleich der kritischen Energie nach Gl. (11) ist. Mit Gl. (37), (38) erhält man dann für die Viskosität η die Formel:

$$\eta = \frac{\sigma}{\dot{\epsilon}} = \frac{v \cdot d \cdot kT \cdot \sqrt{M}}{\pi \cdot a \cdot z \cdot r^4 \cdot b^2 \cdot \sqrt{v \cdot G}} \cdot e^{\frac{E_1}{kT}} \quad (39)$$

oder mit den speziellen Werten von v , d , b des A1- bzw. A3-Gitters, dem Radius r nach Gl. (3), (16) und mit $z=2$, $a=4/5$:

$$\eta = 1,0 \cdot 10^{-2} \cdot v^{-\frac{3}{2}} \cdot M^{\frac{1}{2}} \cdot T^{\frac{1}{2}} \cdot \sqrt{\frac{kT}{v \cdot G}} \cdot e^{\frac{E_1}{kT}} \quad [\text{c.p.}] \quad (40)$$

Für die Viskosität η_m am Schmelzpunkt können wir in den letzten beiden Gliedern von Gl. (40) die Formeln Gl. (22), (17), (30) einsetzen und erhalten bei Vernachlässigung der Korrekturen μ und der Volumenänderung am Schmelzpunkt:

$$\eta_m \approx 5,9 \cdot 10^{-2} \cdot v^{-\frac{3}{2}} \cdot M^{\frac{1}{2}} \cdot T^{\frac{1}{2}} \quad [\text{c.p.}] \quad (41)$$

Die Energieerhöhung durch die μ -Korrekturen wird dabei größtenteils kompensiert durch eine entsprechende Erniedrigung des Schermoduls infolge der Volumenänderung beim Schmelzen. Es hat deswegen wenig Sinn, diese Korrekturen im einzelnen zu berücksichtigen, da ihre Werte sowieso aus den elastischen Kristalldaten bei Raumtemperatur bestimmt werden müßten und eine derartige Extrapolation auf den schmelzflüssigen Zustand viel zu unsicher ist.

Gl. (41) hat die Form der bekannten Andradeschen Viskositätsformel²⁹. Insbesondere stimmt der Zahlenfaktor mit dem empirischen Wert von $5,7 \cdot 10^{-2}$ in der Formel von ANDRADE nahezu überein.

Für die Aktivierungsenergie E_v der Viskosität, wie man sie empirisch aus der Steigung der Kurven $\ln(\eta/T)$ im Abszissenmaß $1/RT$ bestimmt, erhalten wir aus Gl. (39) sowie den Gl. (22), (17) bei Vernachlässigung der Korrekturen:

$$E_v \approx E_{10} \approx 0,12 \cdot v_r \cdot G_r \cdot (1 + t \cdot T_r). \quad (42)$$

Tabelle 2 läßt erkennen, daß die Übereinstimmung zwischen den empirischen Werten (nach Messungen von GEBHARDT³⁰) und den nach Gl. (42) berechneten Werten zufriedenstellend ist.

Tabelle 2. *Experimentelle und berechnete Werte für die Aktivierungsenergie der Viskosität von Metallschmelzen*

	Cu	Ag	Au	Al	Pb
E_v emp. . .	9	8	7	4	4 kcal/mol
E_v ber. . .	9	8	8	8	5 kcal/mol

Im ganzen gesehen, zeigen die vorliegenden Untersuchungen, daß das Modell der Atomversetzung sich durchaus zu bewähren scheint und im Gegensatz zu den bisherigen Modellen zu keinen groben Widersprüchen mit empirischen Tatbeständen führt. Die zukünftige Entwicklung der Theorie dürfte jedoch vorerst von genaueren experimentellen Untersuchungen abhängen.

Herrn Professor H. J. SEEMANN danke ich für sein förderndes Interesse an dieser Arbeit.

²⁹ ANDRADE, E. N. DA C.: Proc. Roy. Soc. Lond. A **215**, 37 (1952).

³⁰ GEBHARDT, E.: Z. Metallkde. **43**, 106/292 (1952); **44**, 379/510 (1953); **45**, 83 (1954); **46**, 90 (1955).

Aus dem Laboratorium für Technische Physik der Technischen Hochschule München
und dem Institut der Kommission für Tieftemperaturforschung
der Bayerischen Akademie der Wissenschaften

Untersuchung des Streuquerschnittes von Eis für sehr langsame Neutronen bei 4° K

Von

TASSO SPRINGER und WERNER WIEDEMANN

Mit 2 Figuren im Text

(Eingegangen am 12. Mai 1961)

Der vorwiegend inkohärente Streuquerschnitt σ_s von Eis bei 4° K wurde im Bereich von Neutronenenergien zwischen $2,5 \cdot 10^{-4}$ und $3 \cdot 10^{-3}$ eV durch Transmissionsversuche bestimmt. Aus der Energieabhängigkeit $\sigma_s(E)$ läßt sich unmittelbar die mittlere Nullpunktsschwingungsamplitude der Protonen u berechnen, sofern man die Beiträge unelastischer Streuprozesse zu σ_s vernachlässigt; dies setzt voraus, daß im untersuchten Energie- und Temperaturbereich außer den bekannten Schwingungsmoden im Eis (akustische, optische, Torsions- und innere Schwingungen) keine anderweitigen stark populierte Niveaus bei sehr kleinen Energien vorliegen. Der experimentelle Verlauf $\sigma_s(E)$ war gut mit dem unter dieser Voraussetzung theoretisch berechneten vergleichbar. Der aus der Messung ermittelte Wert für die mittlere Amplitude, $u = 0,19$ Å, stimmt innerhalb der Fehlergrenzen der Messung und der Berechnung (je etwa 10%) mit dem Wert überein, welchen man aus den bekannten Niveauenergien der Eisschwingungsmoden berechnen kann. Dies ist eine Bestätigung für das zugrunde gelegte vereinfachte Schwingungsspektrum und für das Fehlen stärker populierter tiefliegender Energiezustände.

1. Einleitung

Der elastische Neutronen-Streuquerschnitt $\sigma_{s,el}$ des überwiegend inkohärent streuenden Eises ist bei sehr kleinen Temperaturen und Neutronenenergien proportional dem über alle Richtungen gemittelten Debye-Waller-Faktor*. Daraus ist auf einfache Weise die mittlere Schwingungsamplitude der Protonen, u , zu berechnen, die eine integrale Information über das Schwingungsspektrum im Gitter (nämlich dessen — 1. Moment) ergibt. Legt man die heute ungefähr bekannten charakteristischen Energien der akustischen, optischen, Torsions- und inneren Schwingungen im Eis zugrunde (s. Tabelle), so kann man zeigen, daß bei 4° K und bei Neutronenenergien im Bereich von einigen 10^{-3} eV und darunter die unelastischen gegenüber den elastischen Streuprozessen durchwegs zu vernachlässigen sind. Unter diesen Umständen ist der experimentell sehr einfach und genau zu bestimmende gesamte Neutronenstreuquerschnitt $\sigma_s(E)$ praktisch gleich $\sigma_{s,el}$. Der Beitrag der Sauerstoffstreuung ist beim Eis sehr klein.

* Eine ausführliche Diskussion der elastischen und unelastischen Streuquerschnitte vgl. bei SJÖLANDER¹⁰ und KOTHARI und SINGWI¹⁶.

Tabelle. *Schwingungszustände in Eis* [zu Gl. (3)]

Art	Zahl der Freiheitsgrade pro Molekül	Charakteristische Energien (Mittelwerte*) [eV]	Direkte Bestimmungsmoden	Theoretische Berechnungen
1. Innere Schwingungen des H ₂ O-Moleküls a) längs OH-Brücke, symmetrisch b) desgl., unsymmetrisch c) Knickschwingung	je 1	$E_{v1} = 0,40$ $E_{v3} = 0,40$ $E_{v2} = 0,20$ $\bar{E}_v^{-1} = \frac{1}{3} \sum_{i=1}^3 E_{vi}^{-1} = 3,3 \text{ eV}^{-1}$	Raman- und Infrarot-spektroskopie [3], [6], [2]	vgl. [6]
2. Torsionsschwingung um Molekül-Trägheitsachsen (behinderte Rotation)	3	$F_r = 0,075$	Raman-Spektrum [7] Neutronenspektrum [9], [5]	[3], [8]
3. Translationsschwingungen der Molekülschwerpunkte a) harte optische Schwingungen b) weiche optische und akustische Schwingungen $f(\omega) = \frac{1}{2} \delta(\hbar\omega - E_0) + \frac{1}{2} \frac{3}{(k\Theta_g)^3} (\hbar\omega)^2$ für $\hbar\omega < k\Theta_g$	3/2 3/2	$E_0 = 0,026$ $\Theta_g \approx 155 \dots 160^\circ \text{ K}$	Raman-Spektrum [3], [7] <i>indirekt</i> (s. Text)	[3], [8], [4], [1]

Effektive Debye-Temperatur

$$\text{für } T < \Theta_{\text{eff}}: \Theta_{\text{eff}} = \frac{3\hbar/2k}{\omega^{-1}} = 235^\circ \text{ K}^{**}$$

$$\text{für } T > \Theta_{\text{eff}}/2: \Theta_{\text{eff}} = (3\hbar^2/k^2 \omega^{-2})^{1/2} = 215^\circ \text{ K}$$

* Ungefähre Linienschwerpunkte bzw. Mittelwerte, wenn es sich wie bei 2) und 3a) um Bänder, oder wie bei 1) um aufgespaltene Linien handelt. Jeweils Mittel aus mehreren Untersuchungen.

** Hinsichtlich der Definition von Θ_{eff} vgl. Gl. (4a, b) und ²¹.

[1] BJERRUM, N.: Kgl. danske Vid. Selsk. **27**, 1 (1951). — [2] DORSEY, N. E.: Properties of water substance²³. — [3] CROSS, P. C., J. BURNHAM and P. A. LEIGHTON: J. Amer. Chem. Soc. **59**, 1134 (1937). — [4] FORSLIND, E.: ¹⁸. — [5] HUGHES, D. J., H. PALEVSKY, W. KLEY and E. TUNKELO¹. — [6] HERZBERG, G.: Infrared and Raman Spectra of Polyatomic Molecules. New York 1959. — OCKMAN, N., and G. SUTHERLAND: Proc. Roy. Soc. A **247**, 434 (1958). — [7] HUBBEN, J. H.: J. Chem. Phys. **5**, 166 (1937). — [8] MAGAT, M.: Ann. Phys. **6**, 154 (1936). — [9] WOODS, A. D. B., B. N. BROCKHOUSE, M. SAKAMOTO and R. N. SINCLAIR: ¹⁵(22) (1960).

Ziel der vorliegenden Untersuchung war, die mittlere Amplitude u unter der vorausgesetzten Vernachlässigbarkeit der unelastischen Streuung aus dem Experiment zu berechnen. Die Größe u kann dann mit dem Wert verglichen werden, welchen man aus dem bekannten Niveauspektrum des Eises theoretisch findet. Ergibt sich Übereinstimmung hinsichtlich des Verlaufes $\sigma_s(E)$ und des Wertes von u mit der Theorie, so ist dies eine Bestätigung für die Richtigkeit des zugrunde gelegten Niveauspektrums.

Auf diese Weise konnte insbesondere geprüft werden, ob das bei der Neutronenstreuung an Wasser entdeckte, noch nicht interpretierte tiefliegende Energieniveau bei etwa $5 \cdot 10^{-4}$ eV^{1,2,3} eventuell auch im Eis zu bemerken ist. Die Vermutung von dessen Existenz wurde im Zusammenhang mit der — experimentell allerdings noch fragwürdigen — Abbremsung der Neutronen in Eis von 4° K auf sehr niedrige Energien ausgesprochen⁴. Unsere Untersuchungsmethode ist zu diesem Ziel ziemlich empfindlich, da alle anderen, bei größeren Energien liegenden Niveaus für tiefe Temperaturen praktisch nicht mehr angeregt sind; andererseits ist die Zahl der verfügbaren niederenergetischen akustischen Moden, welche von den langsamen Neutronen noch anzuregen sind, sehr gering.

Streuquerschnittsmessungen an Eis bei kleinen Energien und vergleichsweise höheren Temperaturen, bei welchen die unelastische Streuung nicht mehr zu vernachlässigen ist, sind schon früher durch WHITTEMORE u.a.⁵ und bei uns⁶ durchgeführt worden.

Messungen von mittleren Schwingungsamplituden aus der Formfaktoranalyse bei *Beugungsuntersuchungen* liegen für höhere Temperaturen bereits vor, und zwar bei der Neutronenbeugung am vorwiegend kohärent streuenden schweren Eis (PETERSON und LEVY⁷) und für die Röntgenbeugung an gewöhnlichem Eis (OWSTON⁸), sowie später von ZAJAC⁸ an leichtem und schwerem Eis. Soweit es sich dabei um die

¹ HUGHES, D. J., H. PALEVSKY, W. KLEY and E. TUNKALO: Phys. Rev. **119**, 872 (1960). — PALEVSKY, H.: IS/29*, 1960.

² LARSSON, K. E., S. HOLMRYD and K. OTNES: IS/15*.

³ STILLER, H., and H. R. DANNER: IS/35*.

⁴ BORST, L. B.: IS/30*. — Phys. Rev. Letters **4**, 131 (1960).

⁵ WHITTEMORE, W. L., and A. W. McREYNOLDS: IS/34*, 1960.

⁶ HEINLOTH, K.: Z. Physik (im Druck). — HEINLOTH, K., u. T. SPRINGER: IS/6*.

⁷ PETERSON, W., and H. A. LEVY: Acta crystallogr. **10**, 70 (1957).

⁸ ZAJAC, A.: J. Chem. Phys. **29**, 1324 (1958).

⁹ OWSTON, P. G.: J. Chim. Phys. **50** (1953), Suppl., C 13. — Acta crystallogr. **2**, 222 (1949). Phil. Mag. Suppl. **7**, 171 (1958).

* Die Berichte des „Symposium on inelastic scattering of neutrons in solids and liquids“, Wien, Oktober 1960, tragen das Kennzeichen IS/... Sie werden als Proceeding der International Atomic Energy Agency veröffentlicht.

Formfaktoren des Sauerstoff-Moleküls handelt, erhält man die Amplitude der optischen und akustischen Translationsschwingung allein; bei unserer Messung findet man hingegen die Protonenschwingung und somit die Überlagerung sämtlicher Schwingungsmoden. Da die Protonenschwingung merklich anisotrop ist⁷, ist die bei uns ermittelte Größe u als ein Mittelwert über alle Schwingungsrichtungen anzusehen.

Für den elastischen Teil des Streuquerschnittes ergibt sich durch Integration des Debye-Waller-Faktors (vgl. z. B. SJÖLANDER¹⁰) bei rein inkohärenter Streuung:

$$\sigma_{s,el} = \sigma_0 \int_{(4\pi)} e^{-\vec{\kappa} \cdot \vec{u}} d\Omega / 4\pi. \quad (1)$$

$\vec{\kappa} = \vec{k} - \vec{k}'$ ist die Änderung des Wellenvektors bei der Streuung. $3u^2$ ist der quadratische Mittelwert der Ausdehnung der Protonenwellenfunktion („mittlere Schwingungsamplitude“) unter der Annahme einer räumlich isotropen Schwingung. σ_0 ist der gebundene Streuquerschnitt des Protons. Die Integration erstreckt sich über alle Streuwinkel. Drückt man $\vec{\kappa}$ durch E aus, so ergibt sich in erster Ordnung

$$\sigma_{s,el} = \sigma_0 (1 - 4m u^2 E / \hbar^2) \quad (2)$$

(m = Neutronenmasse).

Die Größe σ_0 , d. h. der auf den Energiewert $E = 0$ extrapolierte Wert von $\sigma_{s,el}$ ist im ganzen Energiebereich gleich dem inkohärenten Streuquerschnitt des Neutrons. Die kohärente Streuung verschwindet für Wellenlängen größer als die Braggsche Grenzwellenlänge $\lambda_B = 2d_{\max}$ (d_{\max} = maximaler Netzebenenabstand); für Wellenlängen kleiner als λ_B ist sie vernachlässigbar klein, weil die Formfaktoren¹² für die hier wirksamen Reflexe infolge gegenseitiger Kompensation der O- und H-Streuamplituden sehr klein sind. σ_0 ist demnach gleich dem Gesamtstreuquerschnitt, 81,5 barn*, abzüglich des kohärenten Anteils. Hierfür ist im Falle einer bezüglich der Protonen völlig geordneten Gitterstruktur der Wert $\sigma_{\text{coh}} = 1,8$ barn zu setzen; im Fall einer völlig statistischen Verteilung der Protonen über die potentiellen Plätze auf den O—O-Brücken (Pauling-Modell¹³) sind es maximal 0,9 barn (vgl. die diesbezüglichen Untersuchungen im Zusammenhang mit der Beugung¹⁴ bzw. mit der Messung von $\sigma_s(E)$ ¹⁵ an D₂O-Eis). Somit liegt $\sigma_0 = \sigma_{\text{ges}} - \sigma_{\text{coh}}$ zwischen 159,4 und 161,2 barn/Molekül.

* Alle Kerndaten sind der Zusammenstellung¹¹ entnommen.

¹⁰ SJÖLANDER, A.: Arkiv Fysik **14**, 315 (1958).

¹¹ HUGHES, D. J., and R. B. SCHWARTZ: Neutron Cross Sections BNL-325, 1958.

¹² REINSCH, CH.: Unveröffentlicht.

¹³ PAULING, L.: J. Amer. Chem. Soc. **57**, 2680 (1935).

¹⁴ WOLLAN, E. A., W. L. DAVIDSON and C. G. SHULL: Phys. Rev. **75**, 1348 (1949).

¹⁵ GISSLER, W., T. SPRINGER u. W. WIEDEMANN: Wird demnächst veröffentlicht.

Der unelastische Teil des Streuquerschnitts kann durch näherungsweise Übertragung der von KOTHARI und SINGWI¹⁶ für einen einatomigen kubischen Debye-Kristall hergeleiteten Formeln auf das Eis abgeschätzt werden. Unter Verwendung der in der Tabelle angegebenen effektiven Debye-Temperatur des Translationsspektrums von 235° K, findet man, daß die unelastische Streuung bei unserer Untersuchung weniger als 0,5 % des elastischen Streuquerschnittes ausmacht. Sieht man also das Spektrum in der Tabelle als richtig an, so ist σ_s gleich $\sigma_{s,el}$ nach (1).

Die zur theoretischen Berechnung von u benötigten charakteristischen (mittleren) Vibrations- und Torsions-Energien $1/\overline{E_v^{-1}}$, E_r und das Translationsspektrum von Eis sind in der Tabelle zusammengestellt. Das Amplitudenquadrat u^2 läßt sich als die Quadratsumme der Amplitudenbeiträge der einzelnen Bewegungstypen darstellen (vgl. ¹⁷) gemäß

$$u^2 = \frac{\hbar^2}{2} \left[\frac{\overline{E_v^{-1}}}{M_v} + \frac{1}{M_r E_r} + \frac{1}{M_t} \int_0^\infty f(\omega) \coth(\hbar\omega/2kT) d\omega/\omega \right] \quad (3)$$

[der thermische Gewichtungsfaktor $\coth(\hbar\omega/2kT)$ kann für die ersten zwei Terme praktisch gleich 1 gesetzt werden]. Die an den verschiedenen Bewegungszuständen beteiligten effektiven Massen sind der Arbeit von NELKIN¹⁷ entnommen, der damit den Streuquerschnitt von Wasser in guter Übereinstimmung mit dem Experiment berechnet hat. Es ist $M_v/m = 1,95$, $M_r/m = 2,32$ und $M_t/m = 18$. Für das Integral über die Translationsschwingungen gilt in erster Näherung

$$\int_0^\infty f(\omega) \coth(\hbar\omega/2kT) d\omega/\omega = \begin{cases} (\overline{\hbar\omega})^{-1} & \text{für } kT \ll k\Theta_g; E_0 \\ 2kT(\overline{\hbar\omega})^{-2} & \text{für } kT > k\Theta_g/2; E_0, \end{cases} \quad (4a)$$

wobei $\overline{\omega^n} = \int_0^\infty \omega^n f(\omega) d\omega$ bedeutet mit $\hbar \int_0^\infty f(\omega) d\omega = 1$. Unsere Messungen ergeben wegen der verwendeten tiefen Temperatur die Nullpunktschwingungsamplitude gemäß (4a).

Das Translationsschwingungsspektrum gemäß der Tabelle wurde, ausgehend von den von FORSLIND¹⁸ angegebenen Dispersionskurven folgendermaßen berechnet: die sechs „harten“ optischen Zweige geben Anlaß zu einem schmalen Band im Spektrum, das näherungsweise zu einem Einstein-Term mit einer charakteristischen Energie E_0 zusammengezogen wurde. Den drei akustischen Zweigen und den eng

¹⁶ KOTHARI, L. S., and K. S. SINGWI: Solid State Physics vol. 8, p. 110ff. London 1959.

¹⁷ NELKIN, M. S.: Phys. Rev. **119**, 741 (1960). — McREYNOLDS, A. W., M. S. NELKIN, M. N. ROSEBLUTH and W. L. WHITEMORE: Proc. Geneva Conference **16**, 297 (1958).

¹⁸ FORSLIND, E.: Proc. of the Swedish Cement and Concrete Res. Institute, Stockholm **21** (1954).

daran anschließenden drei niederfrequenten optischen Zweigen wurde ein Debye-Spektrum mit einer Abschneideenergie $\hbar\Theta_g$ zugeordnet. Somit lautet das vereinfachte Translationsspektrum

$$f(\omega) = g \delta(\hbar\omega - E_0) + (1-g) \frac{3(\hbar\omega)^2}{(\hbar\Theta_g)^3} \quad \text{für } \hbar\omega < \hbar\Theta_g, \text{ sonst } 0,$$

mit $g = 1/2$. Θ_g wurde aus den asymptotischen Schallgeschwindigkeiten c_j ($\omega \rightarrow 0$) der drei akustischen Zweige $j = 1, 2, 3$ der Dispersionskurvenschar¹⁸ berechnet. Es gilt dann im Grenzfall sehr großer Wellenlängen (vgl. z. B.¹⁹)

$$(1-g) \frac{3\hbar^3}{(\hbar\Theta_g)^3} = \frac{4\pi}{3N} \int_{(4\pi)} \sum_{j=1}^3 c_j^{-3} d\Omega/4\pi.$$

Die Mittelung über alle Fortpflanzungsrichtungen kann näherungsweise durch eine Mittelung über die ausgezeichneten Achsenrichtungen des Kristalls ersetzt werden, weil sich Eis bezüglich der Schallausbreitung einigermaßen isotrop verhält. Es ergibt sich $\Theta_g = 160^\circ \text{ K}$. Ferner wurde Θ_g aus der spezifischen Wärme $C_v(T)$ bestimmt. Da bei sehr tiefen Temperaturen der Einstein-Term im Schwingungsspektrum praktisch keinen Beitrag zu C_v liefert, gilt $\Theta_g = T[(1-g)(12\pi^4 R/5 C_v(T))]^{1/3}$. Mit den Meßwerten für 10 und 20° K ²⁰ wird $\Theta_g = 155^\circ \text{ K}$. (Eine ausführlichere Diskussion des Eis-Spektrums vgl.²¹.)

Eine gewisse integrale Prüfung des Translationsspektrums ermöglichen die eingangs zitierten Messungen der mittleren Amplituden. PETERSON und LEVY⁷ fanden für die O-Amplitude an D_2O

$$u = 0,17 \text{ \AA} \quad (\text{bei } 223^\circ \text{ K}) \quad \text{und} \quad u = 0,14 \text{ \AA} \quad (\text{bei } 123^\circ \text{ K}).$$

Mit der Tabelle ergibt sich in guter Übereinstimmung [Translationsanteil in Gl. (3) allein] rechnerisch:

$$u = 0,19 \text{ \AA} \quad (\text{bei } 223^\circ \text{ K}) \quad \text{und} \quad u = 0,14 \text{ \AA} \quad (\text{bei } 123^\circ \text{ K}).$$

Nach OWSTON⁹ ist für Eis bei -5° C $u = 0,26 \text{ \AA}$. Wir berechnen einen etwas zu kleinen Wert $u = 0,22 \text{ \AA}$ (Translationsschwingungen allein) bzw. $u = 0,25 \text{ \AA}$ [nach Gl. (3)]^{*}.

Die von ZAJAK⁸ aus der Messung von u -Werten bestimmten effektiven Debye-Temperaturen (224° K für H_2O ; 237° K für D_2O) stehen ebenfalls in Übereinstimmung mit dem aus unserem H_2O -Spektrum berechneten Wert in der Tabelle: $\Theta_{\text{eff}} = 215^\circ \text{ K}$.

2. Messungen

Der Streuquerschnitt σ_s wird durch einen Transmissionsversuch bestimmt. Es gilt

$$\ln(I_0/I) = N d(\sigma_a + \sigma_s).$$

Dabei ist I_0 die Intensität hinter der leeren, I dieselbe hinter der gefüllten Küvette. σ_a ist der gut bekannte und sehr kleine Absorptionsquerschnitt; d ist die Probenschichtdicke, N die Moleküldichte pro cm^3 .

^{*} Die u -Werte nach⁹ sind durch Division durch $\sqrt{3}$ in die von uns verwendeten überzuführen. — Bei deren Messung in⁹ wurde näherungsweise zugrunde gelegt, daß die H- und O-Schwingungsamplituden gleich sind; damit ist der gefundene Wert etwas größer als jener für die O-Schwingung allein.

¹⁹ BLACKMAN, M.: Handbuch der Physik, Bd. VII/1, S. 325. 1955.

²⁰ GIAUQUE, W. F., and J. W. STOUT: J. Amer. Chem. Soc. **58**, 1144 (1936).

²¹ SPRINGER, T.: Nukleonik **3**, 110 (1961).

Die Meßanordnung zeigt Fig. 1. Sie besteht aus dem Kryostat mit der Küvette und einer Zählereinrichtung mit Meß- und Monitor-Zählrohr; als Monochromator diente ein mechanischer Selektor²². Der Einfriervorgang in der Küvette verlief

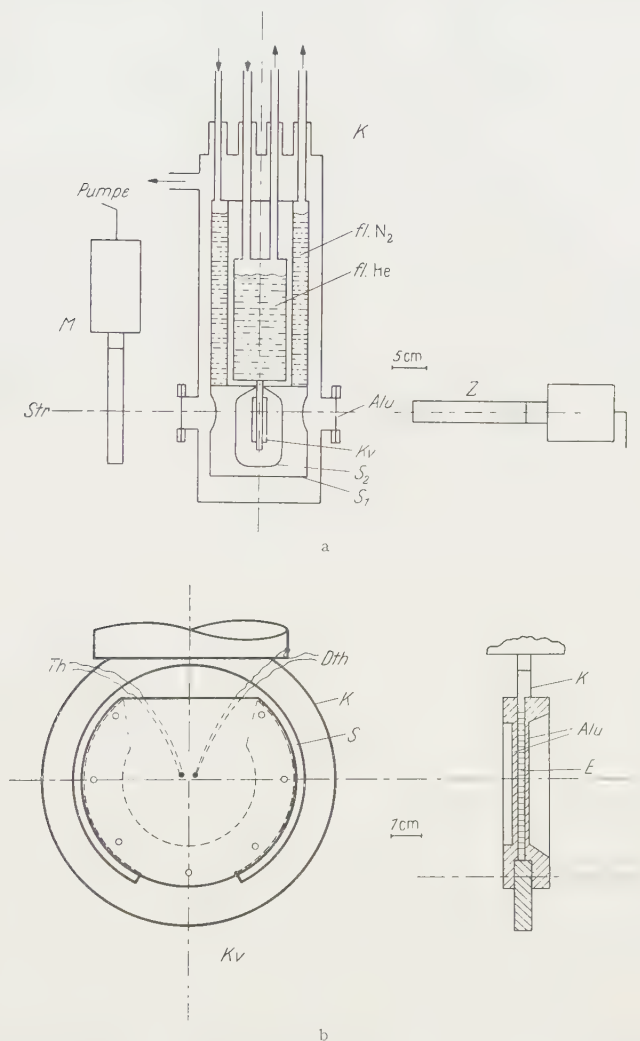


Fig. 1. a Meßanordnung: Str Neutronenstrahl, K Heliumkryostat, M Intensitätsmonitor, Z Meßzählrohr, S_1 Kupferstrahlungsschirm, S_2 adiabatischer Schirm aus Al-Folie, b Küvette; vergrößert: E Eisschicht, K Kupfering, 5 mm stark, S eingesägter Schlitz, Th, Dth Thermoelemente

folgendermaßen: Nach Füllung der Küvette mit im Vakuum entgastem, destilliertem Wasser wurde das Helium-Vorratsgefäß mit flüssigem Stickstoff angefüllt. Mit zunehmender Abkühlung des Kupferinges wächst das Eis von beiden Deckeln

²² HÖHNE, P.: Ann. Phys. 7, 50 (1961).

her langsam zur Küvetten-Mittebene vor, wobei das verdrängte Wasser oben austritt (der eingesägte Schlitz sorgt dafür, daß die Kühlung zuerst von unten her stattfindet und die Öffnung nicht zufriert). Eine Deformation der Küvette erfolgt bei dieser Art des Einfrierens nicht. Nach dem Gefrieren wird der Kryostat evakuiert und auf Heliumkühlung übergegangen. Die Moleküldichte pro cm^2 senkrecht zum Neutronenstrahl ist damit durch die Dichte des Eises unmittelbar am Gefrierpunkt bestimmt, sofern man bezüglich der geringen Kontraktion beim weiteren Abkühlen korrigiert; sie beträgt $\delta V/V = -0,03$ ²³, wovon sich unter der Annahme isotropen Verhaltens $\frac{2}{3}$ in der Strahlrichtung auswirken ($\delta(Nd)/Nd \cong -\delta V/V + \delta d/d = -2\delta V/3V$). Die Dichte am Gefrierpunkt wurde aus mehreren Messungen gesondert in einer ähnlich gebauten Küvette bestimmt. Es ergab sich $\rho = (0,908 \pm 0,01) \text{ gcm}^{-3}$ (Tabellenwert²³ $\rho = 0,916 \pm 0,001 \text{ gcm}^{-3}$). Die Schichtdicke (rund 2 mm) war auf $\pm 0,01 \text{ mm}$ genau bekannt.

Die mit einem Konstantan-Manganin-Differentialthermoelement gemessene Temperatur im Eis stimmte innerhalb der erzielbaren Genauigkeit mit der Heliumbadtemperatur überein.

Die Messung wurde viermal — jeweils mit neuer Küvettenfüllung — durchgeführt. Das Mittel aus den Messungen zeigt Fig. 2. σ_s fällt entsprechend (2) ungefähr linear ab.

3. Diskussion

Aus der Neigung der Kurve in Fig. 2, $d\sigma/\sigma_0 dE = (34 \pm 3) \text{ eV}^{-1}$, findet man als mittlere Schwingungsamplitude nach (2)

$$u = \frac{\hbar}{2} (d\sigma/\sigma_0 dE m)^{\frac{1}{2}} \\ = 0,19 \pm 0,02 \text{ \AA}.$$

Mit dem Spektrum nach der Tabelle, (3) und (4a) ergibt sich theoretisch

$$u = 0,16 \text{ \AA}$$

mit einer geschätzten Unsicherheit von etwa $\pm 10\%$, die vor allem vom Ersatz des Torsionsbandes durch eine δ -Funktion herrühren dürfte.

Unser Wert ist also (wie auch bei OWSTON⁹) etwas kleiner als der berechnete; die Diskrepanz liegt jedoch noch in den Fehlergrenzen. Der Ordinatenabschnitt σ_0 in Fig. 2 ist $156 \pm 3 \text{ barn/Molekül}$ (mittlerer Fehler aus Schwankung der vier Messungen plus Fehler aus Schichtdicke Nd), gegenüber dem oben zitierten Wert von 159,4 bis 161,2 barn.

²³ DORSEY, N.E.: Properties of ordinary water substance. New York: Reinhold Publ. Comp. 1957.

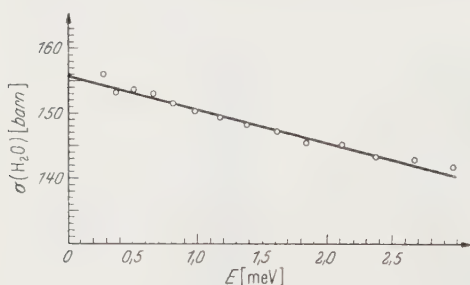


Fig. 2. Streuquerschnitt σ_s pro H_2O -Molekül von Eis bei 4°K , abhängig von der Neutronenenergie E in 10^{-3} eV . Größe der Meßpunkte entspricht ungefähr dem statistischen Fehler. Der Fehler von $\sigma_s(0) - \sigma_0$ (etwa $\pm 3 \text{ barn}$) ist größer als der Fehler im Verlauf der Kurve, da hierbei die Unsicherheit in der Schichtdicke eingeht

Die Übereinstimmung mit der Theorie hinsichtlich der Amplitude u innerhalb der Fehlergrenzen, sowie die Übereinstimmung im Verlauf $\sigma_s(E)$ nach (2) und im Ordinatenabschnitt σ_0 zeigt, daß die verwendeten Daten von der Tabelle mit dem Experiment konsistent sind. Es liegen demnach bei kleinen Energien keine über die Tabelle hinausgehenden weiteren Energiezustände vor, die einen unelastischen An- bzw. Abregungsquerschnitt von mehr als etwa 3 barn zum gemessenen Streuquerschnitt σ_s beitragen.

Ein zusätzlicher Energiezustand im untersuchten Bereich bei einer Anregungsenergie E_x würde sich im einzelnen folgendermaßen auswirken (vgl. z. B. ¹⁶): a) $\sigma_{s,el}$ würde mit E steiler abfallen. b) Beim Überschreiten von E_x würden unelastische Bremsstöße möglich werden; das riefte bei $E = E_x$ eine rasche Zunahme von σ_s hervor, bzw. einen Wendepunkt, sofern es sich um eine breitere Niveauverteilung handeln würde. c) Schließlich kämen Beschleunigungsstöße hinzu, bei denen das Neutron seitens des bei 4° K thermisch schon stark angeregten Niveaus Energie gewinnt. Der diesbezügliche Wirkungsquerschnitt nimmt mit abnehmendem E zu, und zwar für $E \ll E_x$ wie $E^{-\frac{1}{2}}$. a) und c) würden also die Folge haben, daß der Abfall $\sigma_s(E)$ steiler würde, während b) diesem entgegenwirkt. Es ist unwahrscheinlich, daß sich diese Abhängigkeiten gerade so kompensieren, daß sowohl u als auch σ_0 gemäß (2) innerhalb der Fehlergrenzen richtig herauskommen.

Wir danken Herrn Professor MAIER-LEIBNITZ für anregende Diskussionen, den Herren W. GISSLER und F. LEKKERKERK für ihre Mitarbeit bei den Versuchen.

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Gießen

Zur Frage der Elektronennach- und induzierten Photoemission von Germanium und Silizium

Von

G. KANZLER*

Mit 5 Figuren im Text

(Eingegangen am 12. Mai 1961)

Bei Germanium wird die Thermoelektronennachemission bei verschiedenen Anregungsarten untersucht. Aus den Ergebnissen folgt, daß für die Emission nur die an der Oberfläche gebildete Oxyd- bzw. Fremdschicht in Frage kommt. Die bei Einstrahlung von langwelligem Licht auftretende Elektronenemission (induzierte Photoemission) wird nach Elektronenanregung verfolgt und bei Silizium der Zusammenhang zwischen Thermo- und induzierter Photoemission untersucht.

Einleitung

Die Elektronennachemission von Halbleitern wurde in letzter Zeit mehrfach behandelt¹⁻⁴ und dabei besonders auf die Schwierigkeiten der Deutung der Ergebnisse mit Vorstellungen eines Bändermodells hingewiesen. Der naheliegende Schluß war, die Emission Oberflächenschichten (Oxyd- bzw. adsorbierten Fremdschichten) zuzuschreiben. Damit sind wohl auch die unterschiedlichen Ergebnisse zu verstehen, die SEEGER² einerseits, BOHUN¹ und SEIDL⁴ andererseits an Germanium erhielten.

Im folgenden wird nun über Untersuchungen der Nachelektronenemission an Germanium- und Silizium-Einkristallen nach verschiedener Anregung, sowie über die Photoemission nach Elektronenanregung berichtet. Die Messungen wurden im Hochvakuum bei etwa 10^{-5} Torr durchgeführt, wobei die emittierten Elektronen mit einem Sekundärelektronenvervielfacher nachgewiesen wurden. Die Anordnung ist in 5, 6 und 7 ausführlich beschrieben.

* Auszug des 2. Teils von D 26.

¹ BOHUN, A.: Czech. J. Phys. **6**, 198 (1956).

² SEEGER, K.: Z. Physik **149**, 453 (1957).

³ MENOLD, R.: Z. Physik **157**, 499 (1960).

⁴ SEIDL, R.: Z. Physik **157**, 568 (1960).

⁵ GOURGÉ, G., u. W. HANLE: Acta phys. Austriaca **10**, 427 (1957).

⁶ GOURGÉ, G.: Z. Physik **153**, 186 (1958/59).

⁷ VOGEL, A.: Z. Physik **158**, 77 (1960).

Meßergebnisse und ihre Diskussion

1. *Abhängigkeit der Thermoelktronennachemission von der Art der Anregung.* Die Untersuchungen wurden an einem dünnen, etwa 2 cm^2 großen einkristallinen n -Germaniumplättchen (etwa $20 \Omega \text{ cm}$) durchgeführt, das vor der Messung jeweils in CPJ* geätzt wurde. Nach Anregung mit *mittelschnellen Elektronen* (Beschleunigungsspannung zwischen 0,5 und 5 kV) erhält man ein ausgeprägtes Thermoemissionsmaximum bei etwa 300°C , sowie schwächere „Nebenmaxima“ im Temperaturbereich zwischen 50° und 250°C (Fig. 1a). Im Gegensatz zum 300° Maximum ändern sich die Nebenmaxima bezüglich Lage und Intensität mit der Beschleunigungsspannung der anregenden Elektronen. Regt man denselben Kristall mit β -Teilchen (z. B. Sr 90, etwa $4 \cdot 10^{11}$ Teilchen auf 1 cm^2) oder durch Röntgenstrahlung an**, so verschwinden beim Aufheizen die Nebenmaxima ganz, und es erscheint nur noch das 300° -Maximum (Fig. 1).

Zur Deutung stellen wir uns vor, daß die verbotene Zone an der Oberfläche durch eine Oxydschicht von 0,7 auf $>3 \text{ eV}$ aufgebogen wird⁸. Das 300° -Maximum, das nur sehr wenig von der Energie der anregenden Teilchen abhängt, dürfte seine Ursache in Haftstellen im Innern der Oxydschicht haben. Für einen Zusammenhang mit den — ebenfalls in der Oxydschicht lokalisierten — sog. „langsamen Oberflächenzuständen“ ergaben sich keine Hinweise. Für die Nebenmaxima dürften lokalisierte Elektronenhaftstellen in Frage kommen, die von adsorbierten Fremdmolekülen herrühren. Eine Anregung dieser dicht an der Oberfläche sitzenden Zentren ist nur mit langsamen Elektronen möglich.

* CP J besteht aus $120 \text{ cm}^3 \text{ CH}_3\text{COOH}$ (96%ig), $120 \text{ cm}^3 \text{ HF}$ (38%ig), $200 \text{ cm}^3 \text{ HNO}_3$ und Jod, das der Essigsäure zugegeben wird, bis diese gesättigt.

** Die Anregung erfolgte dabei außerhalb der Meßapparatur an Luft.

⁸ KINGSTON, R. H.: J. Appl. Phys. 27, 101 (1956).

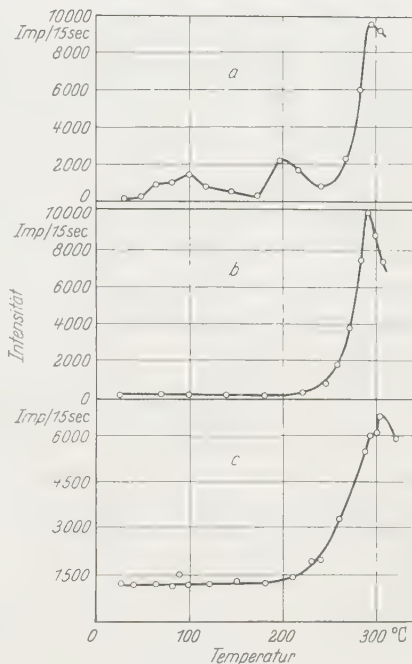


Fig. 1 a—c. Thermoelktronennachemission von n -Germanium: a nach Elektronenanregung (3 kV, etwa 10^{15} Elektronen auf 5 mm^2), b nach β -Anregung (Sr 90, etwa $4 \cdot 10^{11}$ Teilchen auf 1 cm^2), c nach Röntgenanregung (60 kV, 25 mA, 15000 r). Aufheizgeschwindigkeit: $30^\circ/\text{min}$

Nach *UV-Anregung* konnte in Übereinstimmung mit ² keinerlei Nachemission beobachtet werden. Auch nach *Ionenbeschuß* (He-Ionen, 25 kV, $4 \cdot 10^{-8}$ A) trat beim Aufheizen keine Thermoemission auf (Fig. 2c). Es besteht hier natürlich die Möglichkeit, daß beim Beschuß im Hochvakuum (der nicht in der Meß-Apparatur durchgeführt werden konnte) die adsorbierte Fremdschicht und ein Teil der (oder die ganze) Oxydschicht entfernt wird*. Diese Schichten bilden sich nach dem Beschuß dann wieder neu.

Die Verhältnisse ändern sich nun, wenn man zu höheren Teilchenenergien übergeht. So hat eine Bestrahlung mit α -Teilchen (Po 210, Teilchenenergie etwa 5,3 MeV) eine starke Nachemission zur Folge, die zeitlich nur sehr langsam abnimmt. Auch beim Aufheizen auf etwa 300°C ist nur eine Abnahme der Intensität um rund $\frac{1}{4}$ zu beobachten. Dieser Wert ändert sich dann beim anschließenden Abkühlen nicht mehr wesentlich (Fig. 2). Ein Glow-Maximum tritt beim Aufheizen nicht in Erscheinung. Noch nach 50 Std ist der Effekt — mit etwas ver-

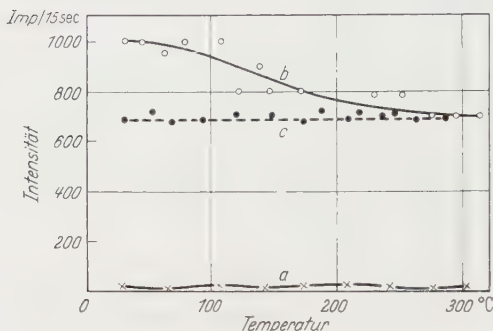


Fig. 2. Elektronennachemission von n-Germanium: *a* nach α -Anregung (etwa $3 \cdot 10^{11}$ Teilchen auf 1 cm^2), Aufheizkurve, *b* nachfolgendes Abkühlen, *c* Beschuß mit Helium-Ionen (25 kV, $4 \cdot 10^{-8}$ A)

minderter Intensität — zu beobachten, obwohl zwischendurch mehrmals auf über 300°C aufgeheizt und bis —100°C abgekühlt wurde. Durch einmaliges kurzes Eintauchen in Ätzlösung kann die Nachemission ganz zum Verschwinden gebracht werden.

Ein ähnliches Verhalten nach intensiver α -Anregung wurde bereits bei Ionenkristallen beobachtet und mit einer bestimmten Fehlstellenverteilung in der Oberfläche zu deuten versucht¹⁰. Das sehr langsame Abklingen und vor allem das Temperaturverhalten (keine Glow-Maxima) deuten darauf hin, daß auch bei Germanium die Emission nach α -Anregung durch eine Oberflächendoppelschicht (Dipolschicht mit positivem Teil in der Oberfläche) stark begünstigt wird. Zu einer derartigen Modellvorstellung kann man gelangen, wenn man die Ergebnisse von BRATTAIN und PEARSON¹¹ berücksichtigt, wonach bei α -Beschuß von Germanium

* Bekanntlich wird Ionenbeschuß zusammen mit Hitzebehandlung im Höchstvakuum zur Herstellung extrem reiner Oberflächen verwandt⁹.

⁹ FORMANN, R.: Phys. Rev. **117**, 698 (1960).

¹⁰ HANLE, W., G. KANZLER u. A. SCHARMANN: Z. Physik (im Druck).

¹¹ BRATTAIN, W. H., and G. L. PEARSON: Phys. Rev. **80**, 846 (1956).

die Defektbildung am Ende des Reichweitenbezirkes größer ist als direkt beim Auftreffen an der Oberfläche und ferner, daß die gebildeten Defekte als Akzeptoren wirken. Im Gegensatz zu Ionenkristallen findet eine Ausheilung dieser Defekte erst bei wesentlich höheren Temperaturen statt. Dies folgt daraus, daß bei Temperaturerhöhung zwischen 300 und 450° C* die Emission sich nicht wesentlich ändert.

2. *Thermoemission und induzierte Photoemission nach Elektronenanregung.* Eine Reihe von Stoffen zeigt nach entsprechender Anregung (Elektronen, Röntgenstrahlen, mechanische Bearbeitung) bereits bei Einstrahlung von langwelligem Licht eine Photoemission, während ohne vorherige Anregung wesentlich kürzere Wellenlängen dazu nötig sind¹². Dieser „induzierte Photoeffekt“ wurde bereits von SEEGER² an Germanium untersucht. Der Autor bezweifelt auf Grund seiner Messungen, daß es sich hier um eine Photoionisation aus Haftstellen (d.h. den Haftstellen, die für die Maxima der Thermoemission verantwortlich sind) handelt, wie z.B. von NASSENSTEIN¹³ angenommen wurde.

Hier wurde nach Elektronenanregung (3 kV, etwa 10^{15} Elektronen auf 5 mm²) von *n*-Germanium bei Lichteinstrahlung unter Verwendung der Filter RG 10, OG 3, GG 14 und GG 5** eine abklingende Elektronenemission beobachtet, die weder rein hyperbolisch noch exponentiell abklingt (SEEGER² hatte bei seinen Untersuchungen an Germanium ein $1/t^n$ -Abklinggesetz festgestellt).

Nach α -Anregung konnte bei Germanium und Silizium im Gegensatz zu Ionenkristallen¹⁰ bei Lichteinstrahlung mit den obigen Filtern keine Änderung der Elektronenemission festgestellt werden. Dies ist ein weiterer Hinweis darauf, daß es sich bei der Emission nach α -Anregung nicht um eine gewöhnliche thermische Emission aus Haftstellen handelt.

Der Zusammenhang zwischen Thermo- und Photoemissionszentren wurde an *p*-Silizium (100 bis 400 Ω cm) näher untersucht. Bei den Messungen wurde ein dünnes, etwa 2 cm² großes einkristallines Plättchen verwandt, zur Lichteinstrahlung diente eine 250 W-Projektorlampe (Osram) mit den oben angeführten Filtern. Auch hier konnte nach Elektronenanregung (1,5 kV, etwa $5 \cdot 10^{15}$ Elektronen auf 5 mm²) bei Lichteinstrahlung kein $1/t^n$ -Abklinggesetz bei der auftretenden Elektronenemission beobachtet werden. Dagegen ergibt sich bei halblogarithmischer Auftragung für nicht zu kleine Zeiten in guter Näherung eine Gerade (Fig. 3). Dies entspricht der Vorstellung einer Photoionisation aus Haftstellen¹³ besser als ein hyperbolischer Abklingvorgang.

* Außerhalb der Meßapparatur mit dem Spitzenzähler durchgeführt.

** Schott-Kantenfilter mit großem Durchlaßbereich, kurzwellige Grenze bei RG 10: 0,72 μ , OG 3: 0,62 μ , GG 14: 0,52 μ und GG 5: 0,45 μ .

¹² KRAMER, J.: Z. Physik **129**, 34 (1951).

¹³ NASSENSTEIN, H.: Naturwissenschaften **41**, 329 (1954).

Die Abweichungen bei kleinen Zeiten (vor allem bei kurzen Wellen) rühren wohl von der gleichzeitigen Entleerung von Termen verschiedener energetischer Tiefe her*. Diese Auffassung läßt sich durch folgendes

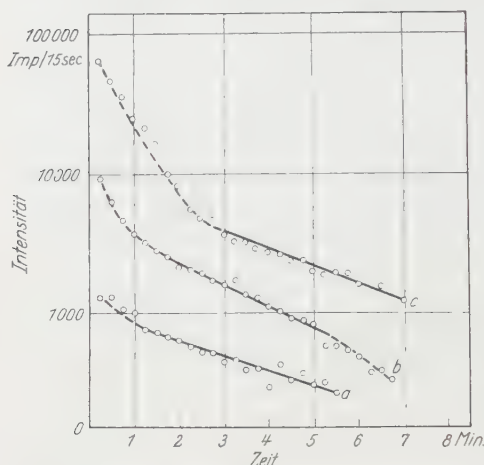


Fig. 3. Abklingen der induzierten Photoelektronenemission nach Elektronen Anregung (1,5 kV, etwa $5 \cdot 10^{15}$ Elektronen auf 5 mm^2) bei p-Silizium, a Filter RG 10, b Filter OG 3, c Filter GG 5

Experiment noch bekräftigen: Strahlt man nach einmaliger Anregung mit Elektronen mit verschiedenen Filtern ein, mit langwelligen beginnend, so ergibt sich jeweils eine exponentielle Abklingkurve (Fig. 4).

Schließlich wurde der Einfluß von gefiltertem Licht auf die Glow-Kurve von p-Silizium näher untersucht. Diese zeigt nach Elektronen-anregung (1,5 kV, etwa $5 \cdot 10^{15}$ Elektronen auf 5 mm^2) zwei Maxima bei 30 und 175°C (Fig. 5). Beim folgenden Versuch wurde nun jeweils 5 min mit 1,5 kV Elektronen angeregt (bei -100°C). Nach Abklingen

der dem Beschuß unmittelbar folgenden Nachemission wurde die Probe so lange mit dem entsprechend gefilterten Licht (durch seitlichen Ansatz

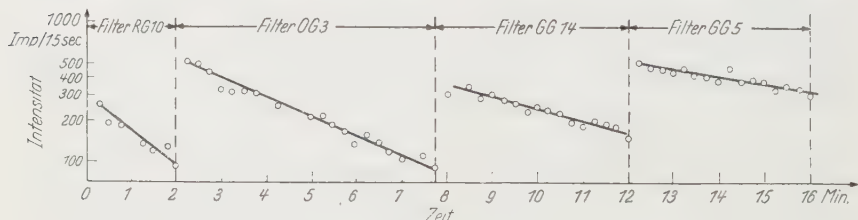


Fig. 4. Induzierte Photoemission von p-Silizium nach einmaliger Anregung mit Elektronen (1,5 kV, etwa $5 \cdot 10^{15}$ Elektronen auf 5 mm^2). Unter Verwendung verschiedener Kantenfilter wurde nacheinander mit immer kürzerwelligem Licht eingestrahlt

mit Planfenster) bestrahlt, bis die dadurch auftretende Photoemission ebenfalls abgeklungen war. Erst dann wurde aufgeheizt und die Glow-

* Eine Überlagerung von bi- und monomolekularen Vorgängen bei der induzierten Photoemission nimmt BOHUN¹⁴ auf Grund von Untersuchungen an röntgenbestrahltem NaCl an (zunächst bei hoher Intensität „retrapping“, dann schließlich Entleerung von Haftstellen im monomolekularen Prozeß). Das von BOHUN an NaCl gefundene hyperbolische Abklingen für kleine Zeiten konnte bei Silizium nicht festgestellt werden.

¹⁴ BOHUN, A.: Czech. J. Phys. 5, 64 (1955).

Kurve gemessen. Es zeigte sich dabei, daß bereits nach Ausleuchten mit Filter RG 10 das erste Maximum verschwindet, das zweite erst dann nahezu, nachdem mit Filter GG 5 eingestrahlt worden ist. Die für die Thermoelektronenemission verantwortlichen Haftzentren lassen sich also optisch entleeren („ausleuchten“) und treten dann beim Aufheizen nicht mehr auf. Für die tiefer liegenden Zentren ist eine entsprechend kürzere Wellenlänge nötig.

Den kürzesten Wellenlängen, die von den Filtern RG 10 und GG 5 noch durchgelassen werden, entsprechen nun aber eV-Beträge (1,7 und 2,7 eV), die sich nicht ohne weiteres mit den thermisch aus der Glow-Kurve bestimmten* (0,6

und 0,9 eV) vereinbaren lassen. Es ist zwar bekannt, daß bei Haftstellen (und Aktivatoren) die optischen Anregungsenergien größer sind als die thermischen¹⁵. Diese Annahme reicht aber wohl zur Erklärung der bei Silizium auftretenden großen Differenzen nicht aus.

Herrn Professor Dr. W. HANLE und Herrn Priv.-Doz. Dr. A. SCHARMANN möchte ich für ihre stete Förderung, der Deutschen Forschungsgemeinschaft für Zuwendungen danken.

* Zur Bestimmung der thermischen Anregungsenergie wurde die aus der Theorie der Lumineszenz bekannte und für die Elektronenemission übernommene Näherungsbeziehung $E_A = \frac{T_M(^{\circ}\text{K})}{500} \text{ eV}$ benutzt, wobei T_M die Temperatur des Glow-Maximums ist.

¹⁵ SCHÖN, M.: Z. Naturforsch. 6a, 287 (1951).

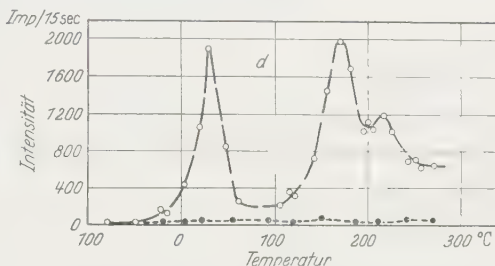


Fig. 5. Thermoelektronenemission von p-Silizium nach Elektronenanregung (2 kV, etwa $5 \cdot 10^{16}$ Elektronen auf 5 mm^2). Aufheizgeschwindigkeit: $25^{\circ}/\text{min}$. — Elektronenanregung, ----- UV-Anregung

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Gießen

Zur Elektronennachemission von Chininsulfat und Dickit

Von

G. KANZLER*

Mit 3 Figuren im Text

(Eingegangen am 12. Mai 1961)

Chininsulfat zeigt beim Aufheizen und Abkühlen an Luft eine Elektronenemission, die mit der Abgabe bzw. Wiederaufnahme von Kristallwasser erklärt wird, im Hochvakuum dagegen nur beim 1. Aufheizen. Dagegen tritt beim Mineral Dickit auch im Hochvakuum bei wiederholtem Aufheizen und Abkühlen eine Elektronenemission mit charakteristischen Maxima auf. Diese wird mit Kristallumwandlungen in Zusammenhang gebracht.

Einleitung

Nach KRAMER¹ und GOURGÉ und HANLE² zeigt Chininsulfat ohne Anregung beim Aufheizen unter dem Spitzenzähler ein Elektronenemissionsmaximum bei etwa 90° C, beim Wiederabkühlen ein gleich intensives bei etwa 40°. Von GOURGÉ wurde zusätzlich beim Abkühlen, nicht beim Aufheizen, ein schwaches Lumineszenzmaximum festgestellt. Diese Effekte wurden mit der Abgabe und Wiederaufnahme von Kristallwasser gedeutet. SUJAK³ fand bei Chininsulfat beim Abkühlen eine wesentlich stärkere Elektronenemission als beim Aufheizen. Der Autor bezweifelt auf Grund seiner Untersuchungen, daß die Kristallwasserabgabe unbedingt mit einer Elektronenemission verbunden ist und weist darauf hin, daß der Spitzenzähler nicht nur auf Elektronen, sondern auch auf Wasserdampf und Gase (z.B. als Zersetzungsprodukte) anspricht und so eine Elektronenemission vortäuschen kann.

Im folgenden werden einige Messungen an Chininsulfat und Dickit im Hochvakuum in der in ⁴, ⁵ und ⁶ ausführlich beschriebenen Anordnung mitgeteilt, wobei die emittierten Elektronen mit einem Sekundärelektronenvervielfacher nachgewiesen wurden.

* Auszug des 3. Teils von D 26.

¹ KRAMER, J.: Z. Physik **133**, 629 (1952).

² HANLE, W.: Acta phys. Austriaca **10**, 339 (1957).

³ SUJAK, B.: Z. angew. Phys. **10**, 531 (1958).

⁴ GOURGÉ, G., u. W. HANLE: Acta phys. Austriaca **10**, 427 (1957).

⁵ GOURGÉ, G.: Z. Physik **153**, 186 (1958/59).

⁶ VOGEL, A.: Z. Physik **158**, 77 (1960).

Meßergebnisse und Diskussion

1. *Chininsulfat*. In Übereinstimmung mit ¹ und ² zeigt sich beim Aufheizen in Luft unter dem Spitzenzähler ein Maximum bei 90° C, beim Abkühlen bei etwa 30°. Mißt man jedoch die Substanz im Hochvakuum, so tritt nur unmittelbar nach Einlegen der Probe ins Hochvakuum das Aufheizmaximum auf. Beim Abkühlen hat die Substanz im Hochvakuum keine Möglichkeit mehr, genügend Wasser aufzunehmen, und zeigt daher — ebenso wie bei nachfolgendem Wiederaufheizen — keine Elektronenemission mehr.

Nach Anregung mit Elektronen (1,5 kV, etwa 10^{15} Elektronen auf 5 mm²) ergeben sich dann zwei Emissionsmaxima bei +5 und +100° C (Fig. 1).

2. *Dickit*. Bei diesem Mineral der Kaolinitgruppe mit der Formel $\text{Al}_4 \cdot (\text{OH})_8 / \text{Si}_4 \text{O}_{10}$ fanden GRÖGLER und STAUFFER⁷ nach raschem Abkühlen von einer über 120° C liegenden Temperatur eine ansteigende Lumineszenz, die nach wenigen Minuten ihr Maximum erreicht und dann wieder langsam abfällt. Beim nachfolgenden Aufheizen erscheint dann eine Thermolumineszenz mit einem Maximum bei 220° C.

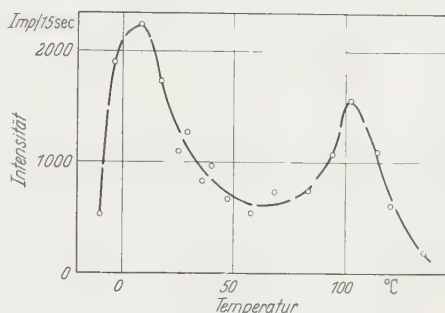


Fig. 1. Thermoelektronennachemission von Chininsulfat nach Elektronenanregung (1,5 kV, etwa 10^{15} Elektronen auf 5 mm²) bei -20° C. Aufheizgeschwindigkeit: 25°/min

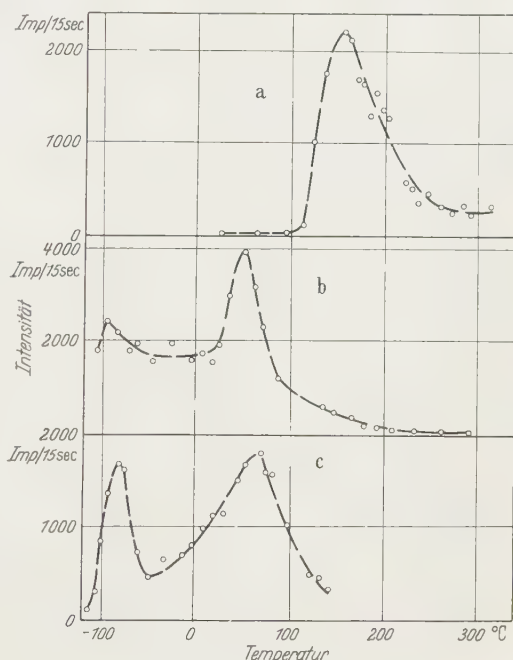


Fig. 2a-c. Elektronenemission von Dickit. a Erstes Aufheizen nach Einlegen der Probe ins Vakuum, b anschließendes Abkühlen von 1: 300 auf -100° C, c erneutes Aufheizen auf 200° C. Aufheizgeschwindigkeit: 30°/min; Abkühlgeschwindigkeit: 20°/min

⁷ GRÖGLER, N., u. H. STAUFFER: Helv. phys. Acta **32**, 129, 284 (1959).

Das Mineral wurde nun auf Elektronenemission untersucht. Benutzt wurde ein Dickit „Sidi Amor ben Salem“ Tunis von Dr. KRANTZ-Bonn. Zunächst erscheint beim ersten Aufheizen (nach Einlegen ins Vakuum) ein Thermoelektronenemissionsmaximum bei 155°C (Fig. 2a). Dieses Maximum tritt bei nochmaligem Aufheizen dann nicht mehr in Erscheinung. Es kann sich dabei entweder um eine durch Reibung angeregte Elektronenemission (das in größeren Stückchen vorliegende Material mußte zwecks Sedimentation zerrieben werden) oder um eine durch Einwirkung von Strahlung radioaktiver Stoffe während geologischer Zeiten⁸ hervorgerufene Elektronenemission handeln.

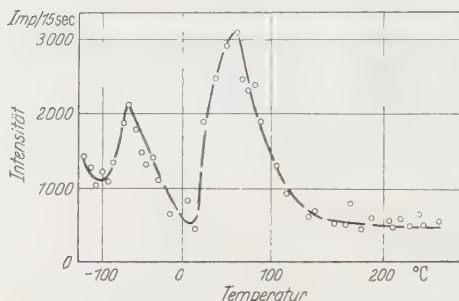


Fig. 3. Thermoelektronennachemission von Dickit nach Elektronenanregung (2 kV, etwa 10^{15} Elektronen auf 5 mm²). Aufheizgeschwindigkeit: $30^{\circ}/\text{min}$

Die dann beim Abkühlen zwischen $+300$ und -100°C auftretende Elektronenemission zeigt ein Hauptmaximum bei etwa 50°C und einige nicht gut reproduzierbare Nebenmaxima bei tieferen Temperaturen. Heizt man — ohne vorherige Anregung — nochmals auf 300°C auf, so ergeben sich zwei Glow-Maxima bei -80 und $+60^{\circ}\text{C}$ (Fig. 2).

Die in ⁷ beschriebene Lumineszenz wird von den Verfassern mit Desorption und Adsorption von Gasen in Zusammenhang gebracht. Diese Deutung dürfte für die im Hochvakuum gemessene Elektronenemission nicht in Frage kommen. Auch scheidet eine Kristallwasserabgabe hier aus.

Zur Deutung wird folgender Mechanismus vorgeschlagen: Eine beim Abkühlen einsetzende Umwandlung des Kristalls liefert für einen Teil der Elektronen die zur Emission nötige Energie. Ein anderer Teil bleibt in Haftzentren lokalisiert und wird beim nachfolgenden Aufheizen thermisch emittiert.

Nach Elektronenanregung (2 kV, etwa 10^{15} Elektronen auf 5 mm²) erhält man bei Dickit eine Glow-Kurve, die ebenfalls zwei Maxima bei -80 und $+60^{\circ}\text{C}$ aufweist, sich also von der ohne Anregung erhaltenen Aufheizkurve nicht wesentlich unterscheidet (Fig. 3).

Herrn Professor Dr. W. HANLE und Herrn Priv.-Doz. Dr. A. SCHARMANN möchte ich für ihre stete Förderung, der Deutschen Forschungsgemeinschaft für Zuwendungen danken.

⁸ GOURGÉ, G.: Diss. Gießen 1958.

Aus dem Institut für theoretische Physik der Universität Mainz

Mehrdimensionaler Hamiltonscher Formalismus*

Von

HELMUT MARX

(Eingegangen am 1. April 1961)

Bei dem bekannten Übergang vom Lagrangeschen zum Hamiltonschen Formalismus hat man *eine unabhängige Variable* (insbesondere: t). In der vorliegenden Arbeit wird der entsprechende Übergang mit *mehreren unabhängigen Variablen* (insbesondere: $x; y; z; i c t$) durchgeführt, zur Anwendung in der physikalischen Feldtheorie; die bekannten Lagrange-Gleichungen mit mehreren unabhängigen Variablen gehen über in „Mehrdimensionale Hamilton-Gleichungen“. Als Beispiel wird das elektromagnetische Feld betrachtet; für das Feld des Viererpotentials bei vorgegebenem Viererstrom werden zwei verschiedene „Mehrdimensionale Hamilton-Funktionen“ angegeben.

1. Lagrange-Gleichungen bei 1 unabhängigen Variablen

Ein Vorgang, der durch n Funktionen der Zeit

$$q_k = q_k(t) \quad (1)$$

beschrieben werden kann ($k=1 \dots n$), sei in seinem zeitlichen Ablauf bestimmt durch n Bewegungsgleichungen, die — so wollen wir annehmen — aus einer Lagrange-Funktion ableitbar sind. Damit ist bekanntlich gemeint, daß die n Bewegungsgleichungen auf die Form

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_k} = \frac{\partial L}{\partial q_k} \quad (2)$$

gebracht werden können, wobei L eine Funktion der $(2n+1)$ Größen $(\dot{q}_1 \dots \dot{q}_n; q_1 \dots q_n; t)$ ist:

$$L = L(\dot{q}_l; q_l; t); \quad (3)$$

hierin ist zur Abkürzung geschrieben:

$$q_l \text{ für } (q_1 \dots q_n); \quad \dot{q}_l \text{ für } (\dot{q}_1 \dots \dot{q}_n); \quad \dot{q}_l \equiv \frac{dq_l}{dt}. \quad (4)$$

Die Funktion (3) ist die „Lagrange-Funktion“; und die Gln. (2) sind die „Lagrange-Gleichungen“, es sind n Gleichungen für die n Zeit-abhängigen Koordinaten q_k .

2. Hamilton-Gleichungen

Von dem Lagrangeschen Formalismus des §1 kommt man, bekanntlich, zu dem Hamiltonschen Formalismus dadurch, daß man — falls möglich — an Stelle der „Geschwindigkeiten“ \dot{q}_k die „Impulse“

$$p_k \equiv \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_k} \quad (5)$$

* Meinem verehrten Lehrer, Professor Dr. KARL BECHERT, zum 60. Geburtstag.

eingführt, und an Stelle der Lagrange-Funktion eine andere Funktion: Wenn die durch Einsetzen von (3) in die rechte Seite von (5) sich ergebenden n Gleichungen

$$p_k = p_k(\dot{q}_l; q_l; t) \quad (6a)$$

sich eindeutig nach den n Geschwindigkeiten \dot{q}_l auflösen lassen:

$$\dot{q}_l = \dot{q}_l[p_m; q_m; t], \quad (6b)$$

so daß man die \dot{q}_k durch die p_k eliminieren kann, dann bilde man

$$\left. \begin{aligned} H &\equiv p_k \dot{q}_k - L \\ &= p_k \dot{q}_k[p_l; q_l; t] - L(\dot{q}_l[p_m; q_m; t]; q_l; t) \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

und sehe diese Größe H , „Hamilton-Funktion“ genannt, als Funktion der $(p_l; q_l; t)$ an:

$$H = H(p_l; q_l; t). \quad (8)$$

Es ist dann

$$\left(\frac{\partial H}{\partial p_k} \right)_{pqt} = \dot{q}_k + p_l \left(\frac{\partial \dot{q}_l}{\partial p_k} \right)_{pqt} - \left(\frac{\partial L}{\partial \dot{q}_l} \right)_{\dot{q}qt} \cdot \left(\frac{\partial \dot{q}_l}{\partial p_k} \right)_{pqt} = \dot{q}_k \quad (9a)$$

(über doppelt in einem Glied vorkommende Indizes ist zu summieren) und

$$\left(\frac{\partial H}{\partial q_k} \right)_{pqt} = p_l \left(\frac{\partial \dot{q}_l}{\partial q_k} \right)_{pqt} - \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_l} \left(\frac{\partial \dot{q}_l}{\partial q_k} \right)_{pqt} - \frac{\partial L}{\partial q_l} \left(\frac{\partial q_l}{\partial q_k} \right)_{pqt} = - \frac{\partial L}{\partial q_k}. \quad (9b)$$

Aus (9b) und (5) folgt, daß man die Bewegungsgleichungen (2) auch so schreiben kann:

$$\frac{d}{dt} p_k = - \frac{\partial H}{\partial q_k}; \quad (10a)$$

zusammen mit den Gln. (9a) oder (10b):

$$\frac{d}{dt} q_k = + \frac{\partial H}{\partial p_k} \quad (10b)$$

sind das $2n$ Gleichungen für die $2n$ Zeit-abhängigen Impulse p_k und Koordinaten q_k . Diese $2n$ Gleichungen (10a, b) sind die „Hamilton-Gleichungen“.

3. Lagrange-Gleichungen bei mehreren (z.B. 4) unabhängigen Variablen

Der raumzeitliche Zusammenhang in einem Feld

$$\left. \begin{aligned} q_k &= q_k(x_1, x_2, x_3, x_4) \\ (k &= 1 \dots n; \quad x_1 \equiv x, \quad x_2 \equiv y, \quad x_3 \equiv z, \quad x_4 \equiv ict) \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

sei durch n Feldgleichungen beschrieben, die — so wollen wir wieder annehmen — als Lagrange-Gleichungen

$$\sum_{i=1}^4 \frac{\partial}{\partial x_i} \frac{\partial L}{\partial q_k^i} = \frac{\partial L}{\partial q_k} \quad (12)$$

aus einer Lagrange-Funktion

$$L = L(q_i^j; q_i; x_j) \quad (13)$$

ableitbar sind. In Gl. (13) ist q_i für $(q_1 \dots q_n)$ und x_j für $(x_1 \dots x_4)$ geschrieben, und q_i^j für die $4n$ Größen $(q_1^1 \dots q_n^1, \dots, q_1^4 \dots q_n^4)$; $q_i^j = \partial q_i / \partial x_j$. Die partiellen Ableitungen $\partial L / \partial q_k$ und $\partial L / \partial q_k^j$ in Gl. (12) beziehen sich auf die Argumente der Lagrange-Funktion $L = L(q_i^j; q_i; x_j)$; die Ableitung $\partial L / \partial x_i$ dagegen bezieht sich auf die unabhängigen Variablen $x_1 \dots x_4$ und wirkt auch auf $q_k = q_k(x_j)$ und $q_k^j = \partial q_k(x_j) / \partial x_i$.

Der Übergang vom Lagrange-Formalismus zum Hamilton-Formalismus, auch bei Feldern, ist wegen der Quantisierung von besonderem Interesse. Bei der kanonischen Feld-Quantisierung nach HEISENBERG und PAULI wird das Feld mit seinen *endlich* vielen *Raum-Zeit-Funktionen* q_k behandelt wie ein mechanisches System mit *unendlich* vielen Freiheitsgraden (*Zeit-Funktionen*); die Quantisierung schließt, wie in der Quanten-Mechanik, an den für nur *eine* unabhängige Dimension (die Zeit) aufgestellten Hamilton-Formalismus an.

Im folgenden § 4 werden wir — ganz entsprechend, wie man für Zeit-abhängige Vorgänge (mechanische Systeme) nach § 2 aus den Lagrange-Gleichungen mit *einer* unabhängigen Variablen (der Zeit) die Hamilton-Gleichungen mit *derselben* (*einen*) unabhängigen Variablen erhält — für Raum-Zeit-abhängige Vorgänge (Felder) von den Lagrange-Gleichungen mit *mehreren* unabhängigen Variablen $(x_1 x_2 x_3 x_4)$ zu „mehrdimensionalen Hamilton-Gleichungen“ mit *denselben* (*mehreren*) unabhängigen Variablen kommen. Diese Verallgemeinerung des Hamilton-Formalismus ist anscheinend in der Theorie der Felder noch nicht eingeführt und untersucht worden*.

* Vielleicht lohnt es sich, nach einem Quantisierungsverfahren zu suchen, das an den *mehrdimensionalen* Hamilton-Formalismus in einer entsprechenden Weise anschließt, wie das übliche Quantisierungsverfahren an den bekannten Hamilton-Formalismus anschließt. Bei einer solchen (noch unbekannten) Feld-Quantisierung würde die *mehrdimensionale* Hamilton-Funktion K [Gl. (18)] die Rolle spielen, die bei der üblichen Quantisierung die Hamilton-Funktion H spielt; da H die Dimension einer Energie und K die Dimension einer Energiedichte hat, würde möglicherweise an Stelle des Wirkungsquantums \hbar eine Naturkonstante \hbar von der Dimension einer Wirkungsichte auftreten, mit $\hbar/\hbar = 1/l^3$ also eine Elementarlänge l . Dabei ist etwa an eine Wellengleichung von der ungefähren Bauart

$$\text{wie} \quad \left\{ \sum_{r=1}^4 \bar{\gamma}_r \frac{\hbar}{i} \frac{\partial}{\partial x_r} + K(\underline{p}_i^j; q_i; x_j) \right\} \psi = 0; \quad \psi = \psi(q_i; x_j)$$

$$\text{oder wie} \quad \left\{ \frac{\hbar}{i} \frac{\partial}{\partial x_r} + \gamma'_r K(\underline{p}_i^j; q_i; x_j) \right\} \psi = 0; \quad \psi = \psi(q_i; x_j)$$

gedacht, mit noch unbekannten dimensionslosen Operatoren $\bar{\gamma}_r$ oder γ'_r und mit noch unbekannten Operatoren \underline{p}_i^j für die in § 4 definierten p_i^j .

4. Mehrdimensionale Hamilton-Gleichungen

Wir gehen aus von dem Lagrange-Formalismus für den allgemeinen Fall von N unabhängigen Variablen (vgl. § 3, wo $N=4$ ist): Die n Feldgrößen q_k in ihrer Abhängigkeit von den N unabhängigen Variablen x_i :

$$q_k = q_k(x_i) \quad (k = 1 \dots n; \quad x_i \text{ ist für } x_1 \dots x_N \text{ geschrieben}) \quad (11a)$$

seien bestimmt durch n Feldgleichungen, die — so wollen wir annehmen — als Lagrange-Gleichungen

$$\sum_{i=1}^N \frac{\partial}{\partial x_i} \frac{\partial L}{\partial q_k^i} = \frac{\partial L}{\partial q_k} \quad (12a)$$

aus einer Lagrange-Funktion

$$L = L(q_l^i; q_l; x_j) \quad (13a)$$

ableitbar sind. An Stelle der verallgemeinerten Geschwindigkeiten

$$q_k^i \equiv \frac{\partial q_k}{\partial x_i} \quad (14)$$

führen wir nun die verallgemeinerten Impulse

$$p_k^i \equiv \frac{\partial L}{\partial q_k^i} \quad (15)$$

ein, vorausgesetzt daß die durch Einsetzen von (13a) in die rechte Seite von (15) sich ergebenden $(N \cdot n)$ Gleichungen

$$p_k^i = p_k^i(q_l^i; q_l; x_j) \quad (16a)$$

sich eindeutig nach den $(N \cdot n)$ verallgemeinerten Geschwindigkeiten q_l^i auflösen lassen:

$$q_l^i = q_l^i[p_m^r; q_m; x_r]. \quad (16b)$$

Nun betrachten wir die Größe

$$\left. \begin{aligned} K &= \sum_{i=1}^N \sum_{k=1}^n p_k^i q_k^i - L \\ &= \sum_i \sum_k p_k^i q_k^i [p_m^r; q_m; x_r] - L(q_l^i [p_m^r; q_m; x_r]; q_l; x_j) \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

— wir nennen sie die „Mehrdimensionale Hamilton-Funktion“ — und sehen sie als Funktion der $(p_l^i; q_l; x_j)$ an:

$$K = K(p_l^i; q_l; x_j). \quad (18)$$

Dann ist

$$\left(\frac{\partial K}{\partial p_k^i} \right)_{p,q,x} = q_k^i + p_l^i \left(\frac{\partial q_l^i}{\partial p_k^i} \right)_{p,q,x} - \frac{\partial L}{\partial q_l^i} \left(\frac{\partial q_l^i}{\partial p_k^i} \right)_{p,q,x} = q_k^i, \quad (19a)$$

wobei über doppelte Indizes zu summieren ist, und

$$\left(\frac{\partial K}{\partial q_k} \right)_{p,q,x} = p_l^i \left(\frac{\partial q_l^i}{\partial q_k} \right)_{p,q,x} - \frac{\partial L}{\partial q_l^i} \left(\frac{\partial q_l^i}{\partial q_k} \right)_{p,q,x} - \frac{\partial L}{\partial q_l} \left(\frac{\partial q_l}{\partial q_k} \right)_{p,q,x} = - \frac{\partial L}{\partial q_k}. \quad (19b)$$

Mit (15) und (19b) lassen sich die Feldgleichungen (12a) auch so schreiben:

$$\sum_{i=1}^N \frac{\partial}{\partial x_i} p_k^i = - \frac{\partial K}{\partial q_k}; \quad (20a)$$

zusammen mit den Gln. (19a) oder (20b):

$$\frac{\partial}{\partial x_i} q_k = + \frac{\partial K}{\partial p_k^i} \quad (20b)$$

sind das $(N+1)n$ Gleichungen für die $(N+1)n$ von (x_j) abhängigen Größen p_k^i und q_k . Diese $(N+1)n$ Gleichungen (20a, b) nennen wir die „Mehrdimensionalen Hamilton-Gleichungen“. Die partiellen Ableitungen $\partial/\partial q_k$ und $\partial/\partial p_k^i$ in (20a, b) beziehen sich auf die Argumente der mehrdimensionalen Hamilton-Funktion $K = K(p_k^i; q_k; x_j)$; die Ableitung $\partial/\partial x_i$ dagegen bezieht sich auf die unabhängigen Variablen $x_1 \dots x_n$ und wirkt auch auf $q_k = q_k(x_j)$ und $p_k^i = p_k^i(x_j)$.

5. Verschiedene Lagrange-Funktionen für das elektromagnetische Feld

Für das elektromagnetische Feld (Viererpotential q_k) bei vorgegebenem Viererstrom $s_k(x_j)$ wird nach SCHWARZSCHILD

$$L_1 = - \frac{1}{4} \left(\frac{\partial q_k}{\partial x_i} - \frac{\partial q_i}{\partial x_k} \right) \left(\frac{\partial q_k}{\partial x_i} - \frac{\partial q_i}{\partial x_k} \right) + s_i q_i \quad (21a)$$

als Lagrange-Funktion genommen, im Hinblick auf die kanonische Feld-Quantisierung auch¹

$$L_2 = - \frac{1}{4} \left(\frac{\partial q_k}{\partial x_i} - \frac{\partial q_i}{\partial x_k} \right) \left(\frac{\partial q_k}{\partial x_i} - \frac{\partial q_i}{\partial x_k} \right) - \frac{1}{2} \frac{\partial q_i}{\partial x_i} \frac{\partial q_k}{\partial x_k} + s_i q_i \quad (21b)$$

(die Zeiteinheit ist hier und im folgenden so gewählt, daß die Lichtgeschwindigkeit $c=1$ wird; über doppelt in einem Glied auftretende Indizes ist zu summieren). Auf diese beiden Lagrange-Funktionen ist der in § 4 beschriebene Übergang zum Mehrdimensionalen Hamilton-Formalismus *nicht* anwendbar, weil man keine eindeutige Auflösung (16b) zur Elimination der $q_k^i \equiv \partial q_k / \partial x_i$ erhält.

Man kann aber von noch anderen Lagrange-Funktionen für das elektromagnetische Feld ausgehen: von

$$L_3 = \frac{1}{2} \frac{\partial q_k}{\partial x_i} \frac{\partial q_k}{\partial x_i} - \frac{1}{2} \frac{\partial q_i}{\partial x_i} \frac{\partial q_k}{\partial x_k} - s_i q_i \quad (22a)$$

oder von dem bekannten, sehr einfachen Ansatz

$$L_4 = \frac{1}{2} \frac{\partial q_k}{\partial x_i} \frac{\partial q_k}{\partial x_i} - s_i q_i; \quad (22b)$$

hierauf ist der in § 4 beschriebene Übergang zum Mehrdimensionalen Hamilton-Formalismus anwendbar.

¹ Vgl. WENTZEL, G.: Quantentheorie der Wellenfelder, S. 108 u. 120. Wien 1943.

6. Lagrange-Funktion L_3 [Gl. (22a)] für das elektromagnetische Feld, zugehörige Mehrdimensionale Hamilton-Funktion

Mit dem Ausdruck (22a) für die Lagrange-Funktion wird

$$p_k^i = q_k^i - \delta_{ik} q_l^l, \quad (23a)$$

daher

$$p_i^i = -3 q_i^i$$

und

$$q_k^i = p_k^i - \frac{1}{3} \delta_{ik} p_l^l, \quad (23b)$$

und die Lagrange-Gleichungen (12) oder (12a) liefern:

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (q_k^i - \delta_{ik} q_l^l) = -s_k,$$

also

$$\frac{\partial}{\partial x_i} \left(\frac{\partial q_k}{\partial x_i} - \frac{\partial q_i}{\partial x_k} \right) = -s_k. \quad (24)$$

Das sind die gleichen Feldgleichungen, wie man sie auch aufgrund der Schwarzschild'schen Lagrange-Funktion L_1 [Gl. (21a)] erhält. Diese Feldgleichungen sagen über die Quellen $\epsilon q_k / \epsilon x_k$ des Viererpotentials nichts aus; aus (24) folgt aber, daß der Viererstrom s_k quellenfrei ist:

$$\epsilon x_k s_k = 0. \quad (25)$$

Die Feldgleichungen (24) sind, mit der Bezeichnung

$$F_{ik} \equiv \frac{\partial q_k}{\partial x_i} - \frac{\partial q_i}{\partial x_k} \quad (= -F_{ki}), \quad (26)$$

die Maxwellschen Gleichungen für die Feldstärken F_{ik} :

$$\epsilon x_i F_{ik} = -s_k, \quad (27)$$

zu denen noch die aus (26) formal folgenden Beziehungen

$$\frac{\partial}{\partial x_i} F_{jk} + \frac{\partial}{\partial x_j} F_{ki} + \frac{\partial}{\partial x_k} F_{ij} = 0 \quad (28)$$

kommen.

Die zu L_3 [Gl. (22a)] gehörige Mehrdimensionale Hamilton-Funktion ist nach (17) und (23b):

$$K = \frac{1}{2} p_k^i p_k^i - \frac{1}{6} p_i^i p_k^k + s_i q_i; \quad (29)$$

wir machen die Probe, daß damit die Mehrdimensionalen Hamilton-Gleichungen (20a, b) die richtigen Feldgleichungen liefern: Nach (20a, b) ist

$$\frac{\partial}{\partial x_i} p_k^i = -s_k, \quad (30a)$$

$$\frac{\partial}{\partial x_i} q_k = p_k^i - \frac{1}{3} \delta_{ik} p_l^l; \quad (30b)$$

hieraus folgt, durch Elimination der verallgemeinerten Impulse p_k^i ,

$$\frac{\partial}{\partial x_i} \left(\frac{\partial}{\partial x_i} q_k - \frac{\partial}{\partial x_k} q_i \right) = \dots s_k,$$

in Übereinstimmung mit (24).

7. Lagrange-Funktion L_4 [Gl. (22b)] für das elektromagnetische Feld, zugehörige Mehrdimensionale Hamilton-Funktion

Mit dem Ausdruck (22b) für die Lagrange-Funktion erhält man nach (12) oder (12a) als Feldgleichungen die Potentialgleichungen:

$$\frac{\partial}{\partial x_i} \frac{\partial}{\partial x_i} q_k = -s_k. \quad (31)$$

Das sind die gleichen Feldgleichungen, wie man sie aufgrund der Lagrange-Funktion L_2 [Gl. (21b)] erhält. (31) und (24) stimmen überein, wenn man zusätzlich die Lorentz-Konvention annimmt, die festlegt, daß das Viererpotential q_k quellenfrei ist:

$$\frac{\partial q_k}{\partial x_k} = 0; \quad (32)$$

dann ist nach (31) auch der Viererstrom s_k quellenfrei:

$$\frac{\partial s_k}{\partial x_k} = 0. \quad (33)$$

Bekanntlich¹ kann man aus den Potentialgleichungen (31) schließen, daß es genügt,

$$\text{zur Zeit } x_4 = 0: \text{ überall } \frac{\partial q_k}{\partial x_k} = 0 \text{ und überall } \frac{\partial}{\partial x_4} \frac{\partial q_k}{\partial x_k} = 0 \quad (34)$$

anzunehmen, um $\partial q_k / \partial x_k = 0$ für alle Zeiten zu garantieren, vorausgesetzt, daß s_k immer und überall quellenfrei ist: Nach (31) ist, $\partial s_k / \partial x_k = 0$ vorausgesetzt,

$$\frac{\partial}{\partial x_i} \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\frac{\partial}{\partial x_4} \right)^a \frac{\partial q_k}{\partial x_k} = 0 \quad \text{mit } a = 0; 1; 2; 3; \dots \quad (35)$$

Mit $Q \equiv \partial q_k / \partial x_k$ ist also

$$\left(\frac{\partial}{\partial x_4} \right)^{a+2} Q = - \left(\frac{\partial^2}{\partial x_1^2} + \frac{\partial^2}{\partial x_2^2} + \frac{\partial^2}{\partial x_3^2} \right) \left(\frac{\partial}{\partial x_4} \right)^a Q, \quad (35a)$$

daher: Wenn zur Zeit $x_4 = 0$ überall $(\partial / \partial x_4)^a Q = 0$ ist, dann ist auch $(\partial / \partial x_4)^{a+2} Q = 0$ überall zur Zeit $x_4 = 0$. Wegen (34) folgt, daß zur Zeit $x_4 = 0$ überall $(\partial / \partial x_4)^a Q = 0$ ist für $a = 0; 1; 2; 3; 4; 5$; undsofort, daß also zu allen Zeiten und überall $Q = 0$ ist.

Die zu L_4 [Gl. (22b)] gehörige Mehrdimensionale Hamilton-Funktion ist nach (17):

$$K = \frac{1}{2} \dot{p}_k^i \dot{p}_k^i + s_i q_i, \quad (36)$$

denn nach (15) ist

$$q_k^i = \dot{p}_k^i. \quad (37)$$

Wir vergleichen den Ausdruck (22b) für die Lagrange-Funktion L_4 :

$$L_4 = \frac{1}{2} q_k^i q_k^i - s_i q_i \quad (22b)$$

$$= \frac{1}{2} \dot{p}_k^i \dot{p}_k^i - s_i q_i \quad (38)$$

und den Ausdruck (36) für die zugehörige Mehrdimensionale Hamilton-Funktion mit den Ausdrücken

$$H_M = E_{\text{kin}} + E_{\text{pot}} \quad (39)$$

und

$$L_M = E_{\text{kin}} - E_{\text{pot}} \quad (40)$$

für die Hamilton-Funktion H_M und die Lagrange-Funktion L_M eines Massenpunktsystems (E_{pot} = potentielle Energie; E_{kin} = kinetische Energie). Dieser Vergleich legt es nahe, zu sagen, daß in den Ausdrücken (36) für K und (22b) oder (38) für L_4 das Glied $\frac{1}{2} q_k^i q_k^i = \frac{1}{2} \dot{p}_k^i \dot{p}_k^i$ die Rolle der kinetischen Energie und das Glied $s_i q_i$ die Rolle der potentiellen Energie spielt.

8. Die Potentialgleichungen (31), ohne die Lorentz-Konvention

Die aus der Lagrange-Funktion L_2 [Gl. (21b)] oder L_4 [Gl. (22b)] abgeleiteten Feldgleichungen (Potentialgleichungen)

$$\frac{\partial}{\partial x_i} \frac{\partial}{\partial x_i} q_k = -s_k \quad (34)$$

lassen, wenn man die Lorentz-Konvention $\partial q_k / \partial x_k = 0$ *nicht* annimmt, eine Erweiterung der elektrodynamischen Grundgleichungen zu. Bemerkenswert ist, daß ein möglichst *einfacher* Ansatz für die Lagrange-Funktion ($L_4 = \frac{1}{2} q_k^i q_k^i - s_i q_i$) diese Erweiterung mit sich bringt.

Die Größe s_k sehen wir jetzt *nicht* als quellenfrei an; wir identifizieren sie also nicht mit dem Viererstrom. Wir definieren s_k als die Summe aus dem quellenfreien Viererstrom, den wir jetzt mit \bar{s}_k bezeichnen, und einer wirbelfreien Größe s'_k :

$$s_k \equiv \bar{s}_k + s'_k; \quad \frac{\partial \bar{s}_k}{\partial x_k} = 0; \quad \frac{\partial s'_k}{\partial x_i} - \frac{\partial s'_i}{\partial x_k} = 0. \quad (44)$$

\bar{s}_k und s'_k sehen wir als vorgegebene Raum-Zeit-Funktionen an; wir fragen nach der Lösung q_k der Feldgleichungen (34), bei vorgegebenem $s_k(x_j) \equiv \bar{s}_k(x_j) + s'_k(x_j)$.

Wegen (41) können wir

$$s'_k = - \frac{\partial}{\partial x_k} V \quad (42)$$

setzen und $V(x_j)$ für $s'_k(x_j)$ als vorgegeben ansehen. Aus (41) und (42) folgt

$$\frac{\partial s_k}{\partial x_k} = - \frac{\partial}{\partial x_i} \frac{\partial}{\partial x_i} V. \quad (43)$$

Nun nehmen wir, anstelle der Lorentz-Konvention,

$$\text{zur Zeit } x_4 = 0: \quad \text{überall} \quad \left(\frac{\partial q_k}{\partial x_k} - V \right) = 0; \quad \frac{\partial}{\partial x_4} \left(\frac{\partial q_k}{\partial x_k} - V \right) = 0 \quad (44)$$

an. Nach (31) ist, wegen (43),

$$\frac{\partial}{\partial x_i} \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\frac{\partial}{\partial x_4} \right)^a \left(\frac{\partial q_k}{\partial x_k} - V \right) = 0 \quad \text{mit} \quad a = 0; 1; 2; 3; \dots \quad (45)$$

Aus (44) und (45) folgt, daß zu allen Zeiten und überall

$$\left(\frac{\partial q_k}{\partial x_k} - V \right) = 0 \quad (46)$$

ist [so wie in § 7 aus (34) und (35) $Q = 0$ folgte]. Aus (46) und (42) folgt weiter:

$$\frac{\partial}{\partial x_k} \left(\frac{\partial}{\partial x_i} q_i \right) = - s'_k. \quad (47)$$

Subtrahiert man (47) von (31), dann erhält man wegen (41):

$$\frac{\partial}{\partial x_i} \left(\frac{\partial}{\partial x_i} q_k - \frac{\partial}{\partial x_k} q_i \right) = - \bar{s}_k. \quad (48)$$

Nach (48) sind die Wirbel des Viererpotentials q_k und der Viererstrom \bar{s}_k allein miteinander verknüpft; nach (47) sind die Quellen des Viererpotentials q_k und die Größe s'_k allein miteinander verknüpft.

Die Potentialgleichungen (31) sind also zerfallen in: 1. die mit den Maxwell'schen Gleichungen übereinstimmenden Gln. (48), 2. die Gln. (47), die eine Erweiterung der elektrodynamischen Grundgleichungen bedeuten. Es ist nicht ausgeschlossen, daß neben dem quellenfreien Viererstrom \bar{s}_k auch der wirbelfreien Größe s'_k eine physikalische Bedeutung zugeschrieben werden kann, und daß neben den Wirbeln des Viererpotentials q_k , die mit der elektrischen und magnetischen Feldstärke identisch sind, auch den Quellen des Viererpotentials q_k eine physikalische Bedeutung zukommt.

Zusatz bei der Korrektur, betreffend die in der Anmerkung zu § 3 angeschnittene Frage einer an den Mehrdimensionalen Hamilton-Formalismus anschließenden Quantisierung. Für den Fall $K = \frac{1}{2} p_k^i p_k^i + K'(q_i; x_j)$, der ohne Quantisierung zu den Feldgleichungen $(\partial/\partial x_i)(\partial/\partial x_i) q_k = -\partial K/\partial q_k$ führt ($i = 1 \dots 4$; $x_4 = ict$;

$k = 1 \dots n$; q_k reell oder rein-imaginär; K' reell), läßt sich zeigen: Haben eine Wellenfunktion $\psi = \psi(q_l; x_j)$ und ihre Adjungierte $\tilde{\psi}$ die Eigenschaft $[(\hbar \partial / \partial x_i)(\hbar \partial / \partial x_i)(\tilde{\psi} \psi)] = (K K \tilde{\psi}) \psi - 2(K \tilde{\psi})(K \psi) + \tilde{\psi}(K K \psi)$, wobei jetzt $K = \frac{1}{2}(\hbar \partial / \partial q_k)(\hbar \partial / \partial q_k) + K'(q_l; x_j)$, also $p_k^i p_k^i \rightarrow (\hbar \partial / \partial q_k)(\hbar \partial / \partial q_k)$ gesetzt ist (und wobei $\partial / \partial x_i$ jetzt bei konstanten q_l und konstanten x_j mit $j \neq i$ gemeint ist), dann ist $I \equiv \int dq (\tilde{\psi} \psi)$ raumzeitlich konstant ($= 1$), vorausgesetzt, daß zu Anfang ($x_4 = 0$) überall $I = \text{const} (= 1)$ und $\partial I / \partial x_4 = 0$ war, und dann gelten die obigen Feldgleichungen für die Mittelwerte $\bar{q}_k \equiv \int dq (\tilde{\psi} q_k \psi)$ und $\overline{\partial K / \partial q_k}$. Die Integrale $\int dq ()$ erstrecken sich über den $(q_1 \dots q_n)$ -Raum, bei festem Ort ($x_1; x_2; x_3$) und fester Zeit x_4 . — Die spinoriellen Lösungen $\psi = \psi(q_l; x_j)$ der Wellengleichung $(\hbar \partial / \partial x_i) \gamma_i \psi = -K \psi$ (mit den Diracschen Operatoren γ_i) und $\tilde{\psi} = \psi^* \gamma_4$ haben die obengenannte Eigenschaft im allgemeinen nicht, auch nicht die Lösungen ψ (und $\tilde{\psi} = \psi^*$) des Gleichungssystems $(\hbar \partial / \partial x_i) \psi = -K \psi_i$; $(\hbar \partial / \partial x_i) \psi_i = -K \psi$, wohl aber die Lösungen ψ und $\tilde{\psi}$ des Gleichungssystems

$$\begin{aligned} (\hbar \partial / \partial x_i) \psi &= -\alpha_i K \psi; & (\hbar \partial / \partial x_i)(\hbar \partial / \partial x_i) \psi &= (\beta + K K) \psi; \\ (\hbar \partial / \partial x_i) \tilde{\psi} &= +\tilde{\alpha}_i K \tilde{\psi}; & (\hbar \partial / \partial x_i)(\hbar \partial / \partial x_i) \tilde{\psi} &= (\beta + K K) \tilde{\psi}; \end{aligned}$$

$\tilde{\alpha}_i \alpha_i = 1$; $\tilde{\beta} + \beta = 0$, bei dem $\tilde{\psi} = \psi^*$ gesetzt werden kann. So geschrieben, hat man in ψ und $\tilde{\psi}$ lineare Gleichungen; nach Elimination der wie ψ und $\tilde{\psi}$ von $(q_l; x_j)$ abhängigen Größen α_i , β und $\tilde{\alpha}_i$, $\tilde{\beta}$ erhält man zwei in ψ und $\tilde{\psi}$ bilineare Gleichungen.

Aus dem Institut für theoretische Physik der Universität Mainz

Zur Frage des hydrodynamischen Verhaltens einfacher Makromolekülmodelle in einem inhomogenen Strömungsfeld*

Von

HENNING MÜLLER

(Eingegangen am 20. März 1961)

Im Zusammenhang mit dem Studium der Bewegungen einfacher Makromolekülmodelle in einem inhomogenen Strömungsfeld entsteht die Frage, ob Aussagen, die das Verhalten des aus dem inhomogen strömenden Medium und den suspendierten Makromolekülen bestehenden Systems „im Großen“ kennzeichnen, ihren Platz im Rahmen der Navier-Stokesschen Hydrodynamik, also im Rahmen einer Kontinuumsstheorie finden können. Es wird durch eine Analyse der Bewegung stark schematisierter Molekülmodelle gezeigt, daß dies in einfachen Fällen zutrifft, daß also Aussagen, die eine Kontinuumsstheorie liefert, äquivalent sind solchen, die im Anschluß an das Studium des Verhaltens einzelner (einfacher) suspendierter Teilchen gewonnen werden können. In der angenommenen Schematisierung liefern die suspendierten Makromoleküle einen Beitrag zur inneren Reibung der strömenden Flüssigkeit.

Anscheinend hat zuerst EINSTEIN¹ den erfolgreichen Versuch unternommen, eine Aussage über die Größe der Moleküle eines gelösten Stoffes aus der inneren Reibung der Lösung und aus der inneren Reibung des Lösungsmittels zu gewinnen; sein Ergebnis ist dies, daß sich die innere Reibung der Lösung von der des reinen Lösungsmittels allein nach Maßgabe des Volumanteils der in Lösung befindlichen — kugelförmig angenommen — Moleküle unterscheidet, und zwar gemäß

$$\bar{k}^* = \bar{k}(1 + 2,5 \Phi), \quad (1)$$

wenn \bar{k}^* und \bar{k} die Reibungskoeffizienten der Lösung bzw. des reinen Lösungsmittels bedeuten, und Φ das Gesamtvolumen der in Lösung befindlichen Moleküle pro Volumeneinheit ist. Vorausgesetzt ist dabei, daß das Volumen eines Moleküls des gelösten Stoffes groß ist gegen das Volumen eines Moleküls des Lösungsmittels; dann ist es nämlich möglich, das Lösungsmittel, d.h. seine Bewegung in unmittelbarer Nähe eines jeden gelösten Moleküls durch die hydrodynamischen Gleichungen zu beschreiben, welche die molekulare Struktur der Flüssigkeit ja nicht berücksichtigen. — Der durch (1) gekennzeichnete Sachverhalt ist mithin so zu charakterisieren: Der Veränderung, welche die suspendierten Moleküle in bezug auf das hydrodynamische Verhalten des Lösungsmittels

* Herrn Professor K. BECHERT zum 60. Geburtstag gewidmet.

¹ EINSTEIN, A.: Ann. Phys. **19**, 289 (1906); **34**, 591 (1911).

hervorrufen, kann im Rahmen der Einsteinschen Schematisierung phänomenologisch allein durch einen modifizierten Koeffizienten der inneren Reibung Rechnung getragen werden.

Im folgenden wird zunächst die Bewegung eines einfachen und zwar eines hantelförmigen Makromolekülmodells² untersucht, welches sich in einem inhomogenen Strömungsfeld befindet. Als erstes die Bewegungsgleichung.

Das Modell bestehe aus zwei masselos und starr miteinander verbundenen schweren Kugeln, auf deren jede eine im Sinne Stokesscher Reibung der jeweiligen Relativgeschwindigkeit — d. h. der Geschwindigkeit relativ zum umgebenden, ungestört strömenden Medium — proportionale Kraft wirkt; also: wenn $\mathbf{r}(t)$ die Bahn des Schwerpunktes einer solchen Kugel, und $\mathbf{v}(\mathbf{r})$ die (ungestörte) Strömungsgeschwindigkeit an einer Stelle \mathbf{r} bedeuten, so ist mit einer Konstanten α

$$\frac{d^2\mathbf{r}}{dt^2} + \alpha \left(\mathbf{v}(\mathbf{r}) - \frac{d\mathbf{r}}{dt} \right) = 0. \quad (2)$$

Eine solche Gleichung³ würde also für die beiden Kugeln, d. h. für ein \mathbf{r}_1 und für ein \mathbf{r}_2 aufzuschreiben sein, wobei \mathbf{r}_1 und \mathbf{r}_2 gemäß $|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2| = 2r_0$ miteinander gekoppelt sein müssen; $2r_0$ bedeutet dann den Abstand \mathbf{r}_1 , \mathbf{r}_2 .

Speziell gelte für die kartesischen Komponenten des Geschwindigkeitsfeldes

$$\mathbf{v} = (0, 0, v), \quad v = qy, \quad \mathbf{v} = e_z qy \quad (3)$$

(x, y, z sind kartesische Koordinaten, e_x, e_y, e_z entsprechende Einheitsvektoren, q ist eine Konstante.) Weiter werde angenommen, daß der Schwerpunkt des betrachteten, starren Modells im Ursprung des Koordinatensystems ruht — aus Symmetriegründen stellt dies keine Beschränkung der Allgemeinheit dar —, d. h. $\mathbf{r}(t)$ liegt auf einer Kugel, die durch

$$F(\mathbf{r}) = (r - r_0) = 0 \quad (4)$$

gekennzeichnet werden kann. Die Bedingung $F(\mathbf{r}) = 0$ legt die Verwendung eines passend orientierten Systems sphärischer Polarkoordinaten r, ϑ, φ und entsprechender Einheitsvektoren $e_r, e_\vartheta, e_\varphi$ nahe; damit wird

$$\begin{aligned} \frac{d\mathbf{r}}{dt} &= e_\vartheta r_0 \dot{\vartheta} + e_\varphi r_0 \dot{\varphi} \sin \vartheta \\ \mathbf{v}(\mathbf{r}) &= q r_0 \sin \vartheta \sin \varphi (e_r \cos \vartheta - e_\vartheta \sin \vartheta) \\ \frac{d^2\mathbf{r}}{dt^2} &= -e_r r_0 (\dot{\vartheta}^2 + \dot{\varphi}^2 \sin^2 \vartheta) + \\ &\quad + e_\vartheta r_0 (\ddot{\vartheta} - \dot{\varphi}^2 \sin \vartheta \cos \vartheta) \\ &\quad + e_\varphi r_0 (2\dot{\varphi} \dot{\vartheta} \cos \vartheta + \ddot{\varphi} \sin \vartheta). \end{aligned}$$

² KUHN, W., H. KUHN u. P. BUCHNER: Hydrodynamisches Verhalten von Makromolekülen in Lösung. *Ergebn. exakt. Naturw.* **25** (1951).

³ MÜLLER, H.: *Ann. Phys.* **19**, 304 (1957).

Die Beschränkung der Bewegung gemäß (4) hat natürlich das Auftreten einer gegen den Punkt $r=0$ hin gerichteten Zwangskraft zur Folge, deren Komponenten

$$\bar{f}_r \sim \lambda_r, \quad \bar{f}_\varphi = 0, \quad \bar{f}_\vartheta = 0 \quad (5)$$

sind. Mithin entsprechen dem Bewegungsproblem die Lagrangeschen Gleichungen 1. Art

$$\left. \begin{aligned} (a) \quad & \dot{\vartheta}^2 + \dot{\varphi}^2 \sin^2 \vartheta - \alpha q \sin \vartheta \cos \vartheta \sin \varphi = \lambda_r \\ (b) \quad & 2\dot{\varphi} \dot{\vartheta} \cos \vartheta + \ddot{\varphi} \sin \vartheta - \alpha \dot{\varphi} \sin \vartheta = 0 \\ (c) \quad & \ddot{\vartheta} - \dot{\varphi}^2 \sin \vartheta \cos \vartheta - \alpha (\dot{\vartheta} + q \sin^2 \vartheta \sin \varphi) = 0. \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

Herausgegriffen werde zunächst ein besonders einfacher Bewegungstyp, nämlich der durch $\varphi = \pi/2, 3\pi/2$ gekennzeichnete; genauer: es sei $\vartheta = +, -\vartheta'$ wenn $\varphi = 3\pi/2, \pi/2$ wonach an Stelle von ϑ' wieder ϑ geschrieben wird. Das heißt

$$\left. \begin{aligned} (a) \quad & \dot{\vartheta}^2 + \alpha q \sin \vartheta \cos \vartheta = \lambda_r(\vartheta) \\ (b) \quad & \ddot{\vartheta} - \alpha (\dot{\vartheta} - q \sin^2 \vartheta) = 0. \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

Die zweite der Gln. (7) ist die eigentliche Bewegungsgleichung, die erste ermöglicht die Bestimmung der Zwangskraft. — Von Interesse ist die Frage, ob periodische Lösungen von (6) oder (7) existieren. Die zweite der Gln. (6) erlaubt offenbar eine Integration

$$\frac{d}{dt} (\dot{\varphi} \sin^2 \vartheta) - \alpha \dot{\varphi} \sin^2 \vartheta = 0.$$

Dies ist die z -Komponente des Drehimpulssatzes; d.h. mit der Bezeichnung $D_z = r_0^2 \dot{\varphi} \sin^2 \vartheta$ gilt

$$\frac{dD_z}{dt} - \alpha D_z = 0 \quad \text{oder} \quad D_z = \bar{D}_z e^{\alpha t}. \quad (8)$$

Der Drehimpuls in Richtung der z -Achse nimmt also nach Maßgabe von (8) exponentiell ab (selbstverständlich ist $\alpha < 0$). Periodische Lösungen — und sie interessieren in erster Linie — können mithin nur solche sein, für welche $D_z = 0$ oder $\dot{\varphi} = 0$ gilt; oder: wenn es periodische Lösungen gibt, dann gehören sie zu den spezielleren Gln. (7).

Auf Lösungen von (7b) ist in einer früheren Arbeit³ hingewiesen worden; hier nur folgendes: durch

$$\dot{\vartheta} = q u(\vartheta)$$

läßt sich (7b) transformieren

$$u u' \cdot q - \alpha (u - \sin^2 \vartheta) = 0, \quad (9)$$

und diese Differentialgleichung kann man leicht graphisch, etwa mit Hilfe des Isoklinenverfahrens, integrieren; die Isoklinen sind offenbar gegeben durch

$$u(\vartheta) = \frac{\alpha \cdot \sin^2 \vartheta}{\alpha - q \cdot \bar{u}'}$$

mit festem $\bar{u}' = \bar{d}u/d\vartheta$, und die Wendepunkte der Lösungen durch

$$qu^2 \sin 2\vartheta + \alpha \sin^2 \vartheta (\sin^2 \vartheta - u) = 0.$$

Das Bild der Integralkurven von (9) bestätigt die aus physikalischen Gründen naheliegende Vermutung, daß sich alle Lösungen für $\vartheta \rightarrow \infty$ einer periodischen Lösung asymptotisch nähern. — Die Bewegung des betrachteten Modells läßt sich also folgendermaßen charakterisieren: Kennzeichen $u(\vartheta)$ eine wirkliche (beliebige) und $u_{\text{per}}(\vartheta)$ eine periodische Bewegung, so gilt mit

$$\Delta(\vartheta) = \frac{u(\vartheta) - u_{\text{per}}(\vartheta)}{u_{\text{per}}(\vartheta)} \\ \lim_{\vartheta \rightarrow \infty} \Delta(\vartheta) = 0. \quad (10)$$

Um den Beitrag zur inneren Reibung zu ermitteln, den die suspendierten Moleküle leisten, wird zweckmäßig zuerst die bei der Bewegung eines Teilchens verzehrte Energie aufgeschrieben. — Bedeuten w die vektorielle Strömungsgeschwindigkeit am Ort des Teilchenmodells und bezogen auf diesen Ort, und m die Masse eines Hantel-Teilchens, so ist, wie man leicht sieht, die in Reibungswärme umgesetzte Energie

$$E_r = -m\alpha \int w^2 dt$$

und unter den vereinfachenden Annahmen, welche von (6) zu (7) geführt haben, gilt

$$E_r = -m\alpha r_0^2 \int (q^2 \sin^2 \vartheta + \dot{\vartheta}^2 - 2q\dot{\vartheta} \sin^2 \vartheta) dt, \quad (11)$$

und zwar ist (11) natürlich richtig sowohl für den Fall einer periodischen wie auch für den Fall einer nichtperiodischen Lösung von (7b). Wird nun speziell eine periodische Bewegung ins Auge gefaßt, so läßt sich die während einer Drehung verzehrte Energie leicht ausrechnen; aus (9) folgt nämlich durch Integration nach t

$$\int_t^{t+\tau} \sin^2 \vartheta(\omega) d\omega = \frac{2\pi}{q}$$

(τ bedeutet die Länge einer Periode) und durch Integration nach ϑ

$$\int_{\vartheta}^{\vartheta+2\pi} \dot{\vartheta}(\zeta) d\zeta = \pi q$$

Das heißt, es wird

$$E_r = -m r_0^2 \alpha \pi q. \quad (12)$$

Befinden sich in der Volumeneinheit n Teilchen, deren jedes ein Eigenvolumen $8/3 \pi \varrho^3$ besitzt (ϱ bedeutet den Radius der Kugeln, welche das Hantel-Modell bilden), und wird zur Bestimmung von τ die Annahme gemacht, daß $\dot{\vartheta}$ durch seinen Mittelwert

$$\frac{1}{2\pi} \int_{\vartheta}^{\vartheta+2\pi} \dot{\vartheta}(\zeta) d\zeta = \frac{q}{2}$$

ersetzbar sei, so folgt, daß im stationären Fall, wenn also alle Teilchen eine periodische Bewegung ausführen, in Volumen- und Zeit-Einheit die Energie

$$E' = \frac{9}{8} k q^2 \frac{r_0^2}{\varrho^2} \Phi \quad (13)$$

verbraucht wird, und zwar unabhängig von der inneren Reibung der strömenden Flüssigkeit, also neben dem Anteil, der zur Aufrechterhaltung der Strömung des Lösungsmittels allein erforderlich ist. Das heißt: Die Strömung des Lösungsmittels allein verbraucht, wie man leicht sieht, einen auf Zeit und Volumen bezogenen Energiebetrag

$$E = k q^2.$$

Die gelösten Moleküle — hier als Hantel-Teilchen schematisiert — erhöhen — im stationären Fall, wenn also alle eine periodische Bewegung ausführen, — vermöge ihrer Eigenbewegung diesen Energieverbrauch nach Maßgabe eines Zusammenhanges²

$$E = k q^2 + E'$$

oder auch

$$E = k^* q^2,$$

d.h. also: dem Vorhandensein der gelösten Hantelteilchen kann phänomenologisch durch einen modifizierten Koeffizienten der inneren Reibung Rechnung getragen werden, und zwar ist²

$$k^* = \frac{9}{8} \frac{r_0^2}{\varrho^2} \Phi, \quad (14)$$

Wenn r_0 und ϱ von der gleichen Größenordnung sind, ist der neue Koeffizient vergleichbar mit dem, den EINSTEIN¹ für kugelförmige Teilchen bestimmt hat, wenn auch bemerkt werden muß, daß die Einsteinsche Schematisierung sehr verschieden ist von der hier diskutierten: während beispielsweise hier die Kraft auf jede der beiden das Teilchen bildenden Kugeln durch die Annahme Stokesscher Reibung bestimmt, und dabei die ungestörte Strömung innerhalb des Bereiches, den die umströmte Kugel einnimmt, als homogen vorausgesetzt wird, betrachtet EINSTEIN die durch die Anwesenheit eines Kugelteilchens modifizierte inhomogene Strömung.

Zum Schluß soll noch auf einen anderen, wie es scheint nicht uninteressanten Sachverhalt hingewiesen werden. Nach einem Satz von HELMHOLTZ und KORTEWEG^{4,5} ist die unter Einwirkung von konstanten Kräften eindeutigen Potentials zustandekommende Bewegung einer reibenden Flüssigkeit durch die Eigenschaft ausgezeichnet, daß die Energiedissipation unter der Voraussetzung vernachlässigbarer Trägheitsglieder für jedes feste Gebiet im stationären Zustand kleiner ist als im Fall irgendeiner anderen Bewegung mit denselben Randwerten der Geschwindigkeit. Man sieht leicht, daß die Bewegung der suspendierten Teilchen für sich allein diesem Satz genügt. Bezeichnet

$$\Omega = -m\alpha r_0^2 q^2 (u^2 + \sin^2 \vartheta - 2u \sin^2 \vartheta)$$

die Energiedissipation, so ist — natürlich unter Verzicht auf eine räumliche Integration — zu verlangen

$$u^2 - u_{\text{per}}^2 - 2 \sin^2 \vartheta (u - u_{\text{per}}) > 0$$

und das heißt

$$u + u_{\text{per}} - 2 \sin^2 \vartheta > 0 \quad \text{wenn} \quad u > u_{\text{per}}$$

$$u + u_{\text{per}} - 2 \sin^2 \vartheta < 0 \quad \text{wenn} \quad u < u_{\text{per}}.$$

Integration von 0 bis 2π führt unter Berücksichtigung von

$$\int_0^{2\pi} u_{\text{per}}(\vartheta) d\vartheta = \pi$$

zum Ergebnis

$$\int_0^{2\pi} u(\vartheta) d\vartheta \leq \pi \quad \text{wenn} \quad u \leq u_{\text{per}},$$

und das stimmt natürlich auf Grund dessen, was über die Lösungen von (9) gesagt wurde. — Auf die Möglichkeit einer Verallgemeinerung ist an anderer Stelle hingewiesen worden⁵.

Die Diskussion hat gezeigt, daß Aussagen, die das Verhalten des aus dem inhomogenen strömenden Medium und den auspendierten Molekülen bestehenden Systems „im Großen“ kennzeichnen und die durch eine Analyse der Bewegung geeignet schematisierter Molekülmodelle zu gewinnen sind, ihren Platz im Rahmen einer hydrodynamischen Kontinuumstheorie finden können. Insbesondere wurde deutlich, daß für das angenommene Strömungsfeld die gelösten Teilchen einen Beitrag zur inneren Reibung der strömenden Flüssigkeit liefern, und daß die Extremalaussage von HELMHOLTZ und KORTEWEG die periodische Bewegung dieser Teilchen, welcher ein stationäres Verhalten des Systems „im Großen“ entspricht, kennzeichnen kann.

⁴ HELMHOLTZ, H.: Wiss. Abh., Lpz. **1**, 223 (1882).

⁵ MÜLLER, H.: ZAMP **9a**, 389 (1958).

Aus dem Institut für Theoretische Physik
der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule, Aachen

Der Drehimpulssatz in der Thermodynamik der irreversiblen Prozesse*

Von

J. MEIXNER

(Eingegangen am 30. Juni 1961)

The conservation law of the angular momentum has not been given sufficient attention in thermodynamics of irreversible processes. It plays an important part, however, when irreversible processes in the presence of electromagnetic fields are examined and the intrinsic angular momentum, due to spins of electrons and nuclei and electron orbits in atoms and molecules, is taken account of. Then the thermodynamic properties of matter with the macroscopic intrinsic angular momentum as an additional extensive parameter can be developed. Thermodynamics of irreversible processes is completed by the fact that a characteristic irreversible process is now associated also with the conservation law of angular momentum and BLOCH's equation of nuclear induction is thus obtained in a straightforward way as one of the phenomenological equations.

1. Einleitung

Die Methode der Thermodynamik der irreversiblen Prozesse zeigt deutlich, daß die irreversiblen Prozesse Erhaltungssätzen zugeordnet sind. So ist beispielsweise die Wärmeleitung mit dem Energiesatz, die innere Reibung mit dem Impulssatz verknüpft. Der Drehimpulssatz schien insofern eine Ausnahme zu bilden, als ihm kein Anteil in der Entropieproduktion und damit kein spezifischer irreversibler Prozeß zugeordnet wäre. Die einzige Folgerung aus dem Drehimpulssatz war allenfalls die Symmetrie des Tensors der Reibungsdrucke. Der Beweis hierfür findet sich in vielen Lehrbüchern. Er beruht darauf, daß die Dichte des Drehimpulses im kontinuierlichen Medium zu $\mathbf{r} \times \varrho \mathbf{v}$ angenommen wird (\mathbf{r} = Radiusvektor, ϱ = Dichte, \mathbf{v} = Geschwindigkeit) und daß der Drehimpulserhaltungssatz für den mechanischen Drehimpuls allein angesetzt wird.

Nun kennen wir aber auch innere Drehimpulse, die vom Bahnmoment der Atome und Moleküle und von den Spins der Elektronen und Atomkerne herrühren. Sie können durch ein Magnetfeld in ihrer Richtung mehr oder weniger geordnet werden und geben dann einen makroskopischen inneren Drehimpuls. Wir bezeichnen seine Dichte, also den auf

* Herrn Professor Dr. KARL BECHERT zum 60. Geburtstag gewidmet.

die Volumeneinheit bezogenen Wert, bei ruhender Materie mit σ . Eine Änderung des inneren Drehimpulses im abgeschlossenen System kann natürlich nur auf Kosten des mechanischen Drehimpulses erfolgen. Experimentell ist dieser Austausch von innerem und mechanischem Drehimpuls durch den Einstein-de Haas-Effekt nachgewiesen worden.

Wir werden zeigen, daß der Austausch von innerem und mechanischem Drehimpuls in die Thermodynamik der irreversiblen Prozesse eingebaut werden kann. Er führt zu einem zusätzlichen Term in der Entropieproduktion und damit zu einer zusätzlichen phänomenologischen Gleichung. Diese erweist sich als eine Verallgemeinerung der Blochschen Gleichung der Kerninduktion. Damit kann also auch die magnetische Relaxation einschließlich der Kerninduktion, soweit überhaupt eine phänomenologische Beschreibung möglich ist, aus der Thermodynamik der irreversiblen Prozesse entwickelt werden.

Wir beschränken uns in der folgenden Darstellung auf fluide Medien (Gase oder Flüssigkeiten) mit einer Komponente, deren Moleküle ein Symmetriezentrum besitzen.

2. Die Thermodynamik eines Systems mit innerem Drehimpuls

Die Gibbssche Fundamentalgleichung der Thermodynamik lautet für ein fluides Einkomponentensystem

$$du = T ds - P d(1/\rho). \quad (2.1)$$

u ist die spezifische innere Energie, s die spezifische Entropie, T die thermodynamische Temperatur und P der thermodynamische Druck. Ist ein elektromagnetisches Feld vorhanden, so treten zwei Terme hinzu, die vom Energiesatz der Maxwellschen Theorie geliefert werden. Es scheint zunächst nicht nötig zu sein, einen weiteren Term einzuführen, der dem inneren Drehimpuls Rechnung trägt, da dieser mit der Magnetisierung \mathbf{M} über das gyromagnetische Verhältnis verknüpft ist. Nun kann aber das gyromagnetische Verhältnis selbst vom Magnetfeld \mathbf{H} abhängen, und überdies hat man zu erwarten, daß die Verknüpfung von σ und \mathbf{M} im Nichtgleichgewicht nicht mehr dieselbe ist wie im Gleichgewicht. Wir werden deshalb den inneren Drehimpuls $V\sigma$ im Volumen V als eine zusätzliche extensive Variable im Sinne der Thermodynamik betrachten. Ihr spezifischer Wert ist σ/ρ , und die thermodynamisch konjugierte Variable sei \mathbf{A} . Wir nennen sie Affinität; ihre Bedeutung wird später ersichtlich werden. Damit ist die Gibbssche Gl. (2.1) zu erweitern in

$$du = T ds - P d\frac{1}{\rho} + \frac{1}{\rho} \mathbf{E} \cdot d\mathbf{D} + \frac{1}{\rho} \mathbf{H} \cdot d\mathbf{B} + \mathbf{A} \cdot d(\sigma/\rho). \quad (2.2)$$

Die Maxwellsche Theorie gibt keine Auskunft darüber, ob bei Dichteänderungen der Faktor $1/\rho$ etwa vor $d\mathbf{B}$ bzw. $d\mathbf{D}$ zu stehen hat oder in

das Differential hineinzunehmen ist. Diese Unbestimmtheit ist jedoch bedeutungslos, da sie sich nur in der Bedeutung des thermodynamischen Drucks P äußert.

Gl. (2.2) beschreibt die Änderung der spezifischen inneren Energie beim Übergang zwischen zwei benachbarten gehemmten Gleichgewichtszuständen. Eine Aufhebung der Hemmung hat zur Folge, daß σ den durch die Magnetisierung und das gyromagnetische Verhältnis bestimmten Gleichgewichtswert annimmt und damit zur abhängigen Variablen wird. Beim Übergang zwischen zwei ungehemmten Gleichgewichtszuständen gilt (2.2) ohne das Drehimpulsglied. Im ungehemmten Gleichgewicht verschwindet also die Affinität A .

An Hand von (2.2) lassen sich einige allgemeine Aussagen über die Abhängigkeiten zwischen den elektromagnetischen Feldstärken und A und σ machen. Es ist jedoch zweckmäßig, vorher ein anderes thermodynamisches Potential einzuführen, derart, daß an Stelle der letzten drei Terme in (2.2)

$$d\tilde{u} = \frac{1}{\varrho} \mathbf{E} \cdot d\mathbf{D} - \frac{\mu_0}{\varrho} \mathbf{M} \cdot d\mathbf{H} + \frac{1}{\varrho} A \cdot d\sigma \quad (2.3)$$

auftritt. Die Magnetisierung \mathbf{M} ist mit der magnetischen Induktion \mathbf{B} und mit der magnetischen Feldstärke \mathbf{H} in der bekannten Weise

$$\mathbf{B} = \mu_0 (\mathbf{H} + \mathbf{M}) \quad (2.4)$$

verknüpft. μ_0 ist die Permeabilität des Vakuums. $d\tilde{u}$ ist, wenn wir s und ϱ festhalten, ein vollständiges Differential in den Variablen \mathbf{D} , \mathbf{H} , σ . Die Funktion \tilde{u} selbst ist skalar und daher nur von den mit \mathbf{D} , \mathbf{H} , σ zu bildenden Invarianten abhängig. Besitzen die Moleküle des fluiden Mediums ein Symmetriezentrum, so sind die einzigen möglichen Invarianten D^2 , H^2 , $\mathbf{H} \cdot \sigma$, σ^2 . Daraus folgt bereits, daß die Vektoren \mathbf{A} und \mathbf{M} linear von den Vektoren \mathbf{H} und σ abhängen. Daher gilt allgemein

$$\mathbf{A} \cdot (\mathbf{H} \times \mathbf{M}) = 0. \quad (2.5)$$

Im ungehemmten thermodynamischen Gleichgewicht ist $A=0$ und

$$\mathbf{M} = \chi \mathbf{H}, \quad \sigma = \gamma^{-1} \mathbf{M} = \frac{1}{\gamma} \chi \mathbf{H}. \quad (2.6)$$

χ ist die magnetische Suszeptibilität, γ das gyromagnetische Verhältnis. Beide können von ϱ , s , H^2 und D^2 abhängen. Wir setzen im Gleichgewicht

$$\sigma/H = \gamma^{-1} \chi \equiv \psi, \quad (2.7)$$

$$d\sigma/dH = \psi + H^2 \psi' \equiv \psi_d, \quad (2.8)$$

wobei mit ψ' die Ableitung nach dem Argument $\frac{1}{2} H^2$ gemeint ist.

Im Nichtgleichgewicht sind, wie bereits erwähnt, \mathbf{M} und \mathbf{A} lineare Funktionen von $\boldsymbol{\sigma}$ und \mathbf{H} , und es ist \mathbf{E} eine lineare Funktion von \mathbf{D} . Alle auftretenden Koeffizienten können von allen Invarianten abhängen. Wir beschränken uns nun auf Zustände, die nahe am ungehemmten thermodynamischen Gleichgewicht liegen. Dann ist $\boldsymbol{\sigma} - \psi \mathbf{H}$ klein, und es ist zweckmäßig, an Stelle der obengenannten Invarianten den gleichwertigen Invariantensatz D^2 , H^2 , $H \cdot (\boldsymbol{\sigma} - \psi \mathbf{H})$, $(\boldsymbol{\sigma} - \psi \mathbf{H})^2$ zu wählen. Aus (2.2) folgt dann unter Vernachlässigung von Gliedern mindestens zweiter Ordnung in $\boldsymbol{\sigma} - \psi \mathbf{H}$

$$\mathbf{M} = \chi \mathbf{H} + \alpha_1 (\boldsymbol{\sigma} - \psi \mathbf{H}) + \alpha_2 ((\boldsymbol{\sigma} - \psi \mathbf{H}) \cdot \mathbf{H}) \mathbf{H}, \quad (2.9)$$

$$\mathbf{A} = \alpha_3 (\boldsymbol{\sigma} - \psi \mathbf{H}) + \alpha_4 ((\boldsymbol{\sigma} - \psi \mathbf{H}) \cdot \mathbf{H}) \mathbf{H}. \quad (2.10)$$

Ferner gilt streng

$$\mathbf{E} = \frac{1}{\varepsilon} \mathbf{D} \quad (2.11)$$

mit einer Dielektrizitätskonstanten ε , die allgemein neben s und ϱ von allen Invarianten abhängen kann.

Die Koeffizienten α_1 bis α_4 hängen entsprechend der Näherung nicht mehr von den Invarianten ab, die $\boldsymbol{\sigma} - \psi \mathbf{H}$ enthalten. Beachtet man, daß (2.3) ein vollständiges Differential in den Variablen \mathbf{H} und $\boldsymbol{\sigma}$ ist, so findet man mit (2.7) und (2.8)

$$\alpha_3 = \frac{\mu_0}{\psi} \alpha_1, \quad \alpha_4 = \frac{1}{H^2} \left(\frac{1}{\psi_d} - \frac{1}{\psi} \right) \mu_0 \alpha_1 + \frac{\mu_0}{\psi_d} \alpha_2. \quad (2.12)$$

Soll die Beziehung $\gamma \boldsymbol{\sigma} = \mathbf{M}$ auch im Nichtgleichgewicht bestehen bleiben, so muß nach (2.9) gelten

$$\alpha_1 = \gamma, \quad \alpha_2 = 0. \quad (2.13)$$

Wir werden von den damit eintretenden Vereinfachungen der thermodynamischen Beziehungen jedoch keinen Gebrauch machen.

Wie in der Thermodynamik der irreversiblen Prozesse üblich und begründet, werden wir die thermodynamischen Eigenschaften auch im Nichtgleichgewicht, insbesondere also auch bei Bewegungen, noch als gültig annehmen. Dabei ist jedoch auf zwei Punkte besonders zu achten. Als elektromagnetisches Feld in den thermodynamischen Zustandsgleichungen hat man nicht das Feld im bewegten Volumenelement vom raumfesten Koordinatensystem aus zu wählen, sondern jenes Feld, welches ein mit dem betrachteten Volumenelement mitbewegter Beobachter feststellt. Dieses ist über eine Lorentz-Transformation zu berechnen, welche das betrachtete Volumenelement auf Ruhe transformiert. Des weiteren ist zu beachten, daß eine eventuelle Rotation des

Volumenelementes durch eine solche Lorentz-Transformation im allgemeinen nicht beseitigt werden kann. Man muß daher damit rechnen daß zur thermodynamischen inneren Energie, die für ein nichtrotierendes System untersucht wurde, und zur kinetischen Energie noch ein Anteil hinzutritt, der von der Drehung des inneren Drehimpulses infolge der makroskopischen Drehung herrührt. Als Beitrag zur Energiedichte ist aus dimensionellen Gründen der Ausdruck

$$\beta \sigma \cdot \text{rot } \mathbf{v} \quad (2.14)$$

mit einer verfügbaren numerischen Konstanten β nahegelegt. Wir können jedoch von diesem Beitrag zur Energiedichte absehen, wenn wir den Energie-Impulstensor des inneren Drehimpulses von BELINFANTE¹, der übrigens auch anders begründet werden kann, zugrunde legen. Er ist quellenfrei und gibt daher keinen Beitrag zu den Bewegungsgleichungen. Im übrigen führt er auf $\beta = -1$.

3. Die Bilanzgleichungen für Masse, Impuls, Energie und Entropie

Da der innere Drehimpuls eng mit der Magnetisierung verknüpft ist, können wir nicht umhin, das Vorhandensein von elektromagnetischen Feldern in den Erhaltungssätzen zu berücksichtigen. Nur die Kontinuitätsgleichung bleibt davon unberührt. Sie lautet

$$\frac{d\rho}{dt} + \rho \operatorname{div} \mathbf{v} = 0; \quad (3.1)$$

unter d/dt wird die substantielle Differentiation verstanden.

Beim Ansatz der Bewegungsgleichung begegnet uns bereits die Schwierigkeit, daß die klassische Hydrodynamik und die Maxwell'schen Gleichungen in ihren Transformationsgesetzen nicht verträglich sind. Es bleibt uns daher nur übrig, uns auf Strömungsgeschwindigkeiten zu beschränken, die klein sind gegen die Lichtgeschwindigkeit, die Transformationsgesetze der elektromagnetischen Feldstärken beim Übergang zu einem anderen Inertialsystem in erster Näherung zu verwenden und nachträglich solche Glieder zu streichen, welche neben den Feldstärken oder deren Differentialquotienten noch die Geschwindigkeit als Faktor enthalten. Eine systematische Behandlung, welche sich von vornherein auf den Boden der speziellen Relativitätstheorie stellt, kann solche Näherungsannahmen entbehren. Eine solche ist in einem allgemeineren Zusammenhange gegeben worden (s. Abschn. 6).

Wir schreiben die Bewegungsgleichung des fluiden Mediums in der üblichen Weise, wobei wir die Komponentendarstellung bevorzugen,

$$\rho \frac{dv_i}{dt} + \frac{\partial w_{ik}}{\partial x_k} = 0. \quad (3.2)$$

¹ BELINFANTE, F. J.: *Physica*, Haag **6**, 887 (1939).

Hier und später führen wir die Konvention ein, wonach über einen laufenden Index, der zweimal in einem Produkt vorkommt, von 1 bis 3 zu summieren ist. Der Tensor w_{ik} ist der Drucktensor, der neben dem thermodynamischen Druck und dem Reibungsdruck auch noch den elektromagnetischen Spannungstensor enthält. Er gibt die ponderomotorische Kraft des Feldes auf das fluide Medium.

Die Änderung der inneren Energie ergibt sich aus der bekannten Gleichung

$$\varrho \frac{du}{dt} + w_{ik} \frac{\partial v_i}{\partial x_k} + \frac{\partial J_i}{\partial x_i} = 0. \quad (3.3)$$

J_i ist der Energiefluß ohne konvektiven Anteil. Er setzt sich aus dem Wärmefluß und einem vom Feld herrührenden Beitrag zusammen.

Durch Einsetzen von (3.3) und (3.4) ergibt sich die Entropiebilanzgleichung zunächst in folgender Gestalt

$$\varrho \frac{ds}{dt} + \frac{\partial}{\partial x_i} (J_i/T) = J_i \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\frac{1}{T} \right) + \frac{1}{T} (P \delta_{ik} - w_{ik}) \frac{\partial v_i}{\partial x_k} - \frac{1}{T} \mathbf{E}' \cdot \frac{d\mathbf{D}'}{dt} - \left. \begin{aligned} & - \frac{1}{T} \mathbf{H}' \cdot \frac{d\mathbf{B}'}{dt} - \frac{1}{T} \varrho \mathbf{A} \cdot \frac{d}{dt} \frac{\boldsymbol{\sigma}}{\varrho} \end{aligned} \right\} \quad (3.4)$$

Mit den Strichen an den elektromagnetischen Feldstärken haben wir angedeutet, daß nicht das wirkliche Feld an der betreffenden Stelle einzusetzen ist, sondern das Feld, wie es ein mit dem Volumenelement mitbewegter Beobachter mißt. Es gilt in erster Näherung

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{E}' &= \mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}, & \mathbf{B}' &= \mathbf{B} - \frac{1}{c^2} \mathbf{v} \times \mathbf{E}, \\ \mathbf{D}' &= \mathbf{D} + \frac{1}{c^2} \mathbf{v} \times \mathbf{H}, & \mathbf{H}' &= \mathbf{H} - \mathbf{v} \times \mathbf{D}. \end{aligned} \right\} \quad (3.5)$$

Es wäre nicht richtig, die rechte Seite von (3.4) als Entropieproduktion zu deuten. Man würde sonst im homogenen, isothermen und ruhenden System auch durch Feldänderungen eine Entropieproduktion erhalten, während doch für hinreichend langsame, d.h. reversible Feldänderungen das Integral über $\mathbf{H}' \cdot d\mathbf{B}'$ und über $\mathbf{E}' \cdot d\mathbf{D}'$ für Kreisprozesse verschwindet. Unsere Meinung ist, daß nur den Erhaltungssätzen irreversible Prozesse mit einer wohldefinierten Entropieproduktion zugeordnet sind; das elektromagnetische Feld gibt keinen direkten Beitrag zur Entropieproduktion, sondern nur auf dem Weg über die von ihm beeinflussten oder erzeugten irreversiblen Prozesse. In der Entropieproduktion sind in unserem Falle daher nur Terme mit $\partial(1/T)/\partial x_i$ und $\partial v_i/\partial x_k$ enthalten sowie ein Zusatz, der dem inneren Drehimpuls Rechnung trägt. Dies bedeutet, daß die Terme in (3.4), welche das elektromagnetische Feld enthalten, in geeigneter Weise in den übrigen Termen untergebracht werden müssen, bevor wir aus (3.4) den Entropiefluß und die Entropieproduktion ablesen.

Dies gelingt, wenn wir vom nichtkonvektiven Energiefluß J_i den Poyntingschen Vektor, wie er im Ruhesystem gemessen wird, abspalten. Durch Umordnen und Vernachlässigungen der oben begründeten Art erhalten wir dann aus (3.4)

$$\left. \begin{aligned} \varrho \frac{ds}{dt} + \frac{\partial}{\partial x_i} \left[\frac{1}{T} (J_i - (\mathbf{E}' \times \mathbf{H}')_i) \right] - [J_i - (\mathbf{E}' \times \mathbf{H}')_i] \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\frac{1}{T} \right) + \\ + \frac{1}{T} [P \delta_{ik} - w_{ik} - H_i B_k - E_i D_k + \delta_{ik} (\mathbf{B} \cdot \mathbf{H} + \mathbf{E} \cdot \mathbf{D})] \frac{\partial v_i}{\partial x_k} - \\ - \frac{1}{T} \varrho \mathbf{A} \cdot \frac{d}{dt} \frac{\boldsymbol{\sigma}}{\varrho} \end{aligned} \right\} \quad (3.6)$$

4. Die Bilanzgleichung des Drehimpulses

Wir führen zunächst den Einheitstensor dritter Stufe ε_{ikl} ein, dessen nicht verschwindende Komponenten die Werte haben

$$\varepsilon_{123} = \varepsilon_{231} = \varepsilon_{312} = 1, \quad \varepsilon_{132} = \varepsilon_{213} = \varepsilon_{321} = -1. \quad (4.1)$$

Damit lassen sich die Komponenten des äußeren Produkts zweier Vektoren \mathbf{a} , \mathbf{b} als $\varepsilon_{ikl} a_k b_l$ schreiben. Aus der Bewegungsgleichung (3.2) folgt durch vektorielle Multiplikation mit dem Radiusvektor und leichte Umformung

$$\varrho \frac{d}{dt} (\varepsilon_{ikl} x_k v_l) + \frac{\partial}{\partial x_m} (\varepsilon_{ikl} x_k w_{lm}) + \varepsilon_{ikl} w_{kl} = 0. \quad (4.2)$$

Dies ist die Bilanzgleichung des Drehimpulses. $\varepsilon_{ikl} x_k v_l$ ist der spezifische Drehimpuls der Bewegung; $\varepsilon_{ikl} x_k w_{lm}$ kann als Fluß des Drehimpulses (ohne Konvektion) gedeutet werden. Das letzte Glied verschwindet genau dann allgemein, wenn $w_{kl} = w_{lk}$ ist. Nur in diesem Falle drückt (4.2) einen Erhaltungssatz für den Drehimpuls der Bewegung aus. Umgekehrt folgern wir, daß w_{kl} nicht mehr symmetrisch sein kann, wenn Austausch zwischen Drehimpuls der Bewegung und innerem Drehimpuls erfolgt. Aus der Erhaltung des Gesamtdrehimpulses können wir jedoch schließen, daß

$$\varrho \frac{d}{dt} \frac{\sigma_i}{\varrho} + \frac{\partial}{\partial x_i} \Sigma_{ik} - \varepsilon_{ikl} w_{kl} = 0 \quad (4.3)$$

ist. Σ_{ik} ist ein Tensor, der den Fluß des inneren Drehimpulses (ohne Konvektion, also Diffusion des inneren Drehimpulses) darstellt. Die Summe der beiden Gln. (4.2) und (4.3) ist nun die mathematische Formulierung eines Erhaltungssatzes für den Gesamtdrehimpuls mit der Dichte $\varrho \mathbf{r} \times \mathbf{v}$. Unter Berücksichtigung von (4.3) läßt sich nun die Gl. (3.6) für die Entropieproduktion nochmals umschreiben in

$$\left. \begin{aligned} \varrho \frac{ds}{dt} + \frac{\partial}{\partial x_i} \left[\frac{1}{T} (J_i - (\mathbf{E}' \times \mathbf{H}')_i - \Sigma_{ik} A_k) \right] - [J_i - (\mathbf{E}' \times \mathbf{H}')_i] \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\frac{1}{T} \right) + \\ + \Sigma_{ik} \frac{\partial}{\partial x_k} \left(- \frac{A_i}{T} \right) + \frac{1}{T} P_{ik} \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_k} + \varepsilon_{ikl} A_l \right) \end{aligned} \right\} \quad (4.4)$$

Hierin bedeutet

$$P_{ik} = P \delta_{ik} - w_{ik} - H_i B_k - E_i D_k + (\mathbf{E} \cdot \mathbf{D} + \mathbf{H} \cdot \mathbf{B}) \delta_{ik}. \quad (4.5)$$

Die Umformung in (4.4) war dadurch möglich, daß $E_i D_k$ nach (2.11) ein symmetrischer Tensor ist und daß $\varepsilon_{ikl} H_i B_k A_l$ nach (2.5) verschwindet. Es ist zweckmäßig, den Tensor P_{ik} in einen symmetrischen Anteil P_{ik}^s und einen antisymmetrischen Anteil $P_{ik}^a = \frac{1}{2} \varepsilon_{ikl} P_l$ zu zerlegen. Dann lautet der letzte Term der rechten Seite von (4.4)

$$\frac{1}{T} P_{ik}^s \cdot \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_k} + \frac{\partial v_k}{\partial x_i} \right) + \frac{1}{T} \mathbf{P} \cdot \left(\mathbf{A} - \frac{1}{2} \text{rot } \mathbf{v} \right), \quad (4.6)$$

wobei der Vektor \mathbf{P} aus den Komponenten P_1, P_2, P_3 aufgebaut ist. Aus der Definition von \mathbf{P} folgt nach (4.5)

$$P_i = -\varepsilon_{ikl} (w_{kl} + H_k B_l) \quad (4.7)$$

und nach (4.3) schließlich

$$\left. \begin{aligned} P_i &= -\varepsilon_{ikl} H_k B_l - \varrho \frac{d}{dt} \frac{\sigma_i}{\varrho} - \frac{\partial}{\partial x_k} \Sigma_{ik} \\ &= \mu_0 (\mathbf{M} \times \mathbf{H})_i - \varrho \frac{d}{dt} \frac{\sigma_i}{\varrho} - \frac{\partial}{\partial x_k} \Sigma_{ik}. \end{aligned} \right\} \quad (4.8)$$

5. Die phänomenologischen Gleichungen

Die rechte Seite von (4.4) kann nun als Entropieproduktion gedeutet werden. Sie hat die Gestalt einer Summe von Produkten von Flüssen und thermodynamischen Kräften. Evident verschwinden im Gleichgewicht alle Kräfte. Das gleichzeitige Verschwinden der Flüsse muß man fordern, damit die Entropieproduktion bei kleinen Abweichungen vom Gleichgewicht nicht negativ wird. Die phänomenologischen Gleichungen sind bei kleinen Abweichungen vom Gleichgewicht lineare Beziehungen zwischen den Flüssen

$$\mathbf{J} - \mathbf{E}' \times \mathbf{H}', \quad \Sigma_{ik}, \quad P_{ik}^s, \quad \mathbf{P} \quad (5.1)$$

und den zugeordneten Kräften

$$\text{grad } \frac{1}{T}, \quad -\frac{\partial}{\partial x_k} \frac{A_i}{T}, \quad \frac{1}{2T} \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_k} + \frac{\partial v_k}{\partial x_i} \right), \quad \frac{1}{T} \left(\mathbf{A} - \frac{1}{2} \text{rot } \mathbf{v} \right). \quad (5.2)$$

Die Koeffizienten in diesen linearen Beziehungen sind Zustandsfunktionen, also Funktionen von $s, \varrho, \mathbf{D}, \mathbf{B}, \boldsymbol{\sigma}$. Bei den vorausgesetzten kleinen Gleichgewichtsabweichungen kann die Abhängigkeit von $\boldsymbol{\sigma}$ vernachlässigt werden. Die Koeffizienten in den phänomenologischen Gleichungen können Skalare, Vektoren oder Tensoren sein, die aus \mathbf{D} und \mathbf{H} aufgebaut sind. Wir sehen davon ab, die allgemeinsten Ansätze aufzuzeigen und beschränken uns auf den Fall eines praktisch ruhenden

Mediums mit gleichförmiger Temperatur und ortsunabhängiger Affinität \mathbf{A} . Dann bleibt nur die phänomenologische Gleichung zwischen

$$\mathbf{P} = \mu_0 \mathbf{M} \times \mathbf{H} - \frac{d\boldsymbol{\sigma}}{dt} \quad (5.3)$$

[s. (4.8)] und \mathbf{A} (den Faktor $1/T$ können wir weglassen). Wir haben also eine lineare Funktion des Vektors \mathbf{A} anzusetzen, wobei noch die Vektoren \mathbf{E} und \mathbf{H} etwa verfügbar sind. Sehen wir von der Abhängigkeit von der Richtung von \mathbf{E} ab, so ist der allgemeinste Ansatz dieser Art

$$-\frac{d\boldsymbol{\sigma}}{dt} + \mu_0 \mathbf{M} \times \mathbf{H} = a_1 \mathbf{A} + a_2 (\mathbf{A} \cdot \mathbf{H}) \mathbf{H}. \quad (5.4)$$

Die phänomenologischen Koeffizienten a_1 und a_2 können Funktionen von E^2 und H^2 sein. Damit die Entropieproduktion nicht negativ wird, haben sie die Ungleichungen

$$\text{zu erfüllen.} \quad a_1 \geq 0, \quad a_1 + a_2 H^2 \geq 0 \quad (5.5)$$

Wir setzen nun für \mathbf{M} und \mathbf{A} die Ausdrücke (2.9) und (2.10) ein und erhalten

$$\left. \begin{aligned} \frac{d\boldsymbol{\sigma}}{dt} - \mu_0 \alpha_1 \boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{H} &= -a_1 \alpha_3 (\boldsymbol{\sigma} - \psi \mathbf{H}) \\ &\quad - (a_1 \alpha_4 + a_2 \alpha_3 + a_2 \alpha_4 H^2) ((\boldsymbol{\sigma} - \psi \mathbf{H}) \cdot \mathbf{H}) \mathbf{H}. \end{aligned} \right\} \quad (5.6)$$

Dies ist eine Verallgemeinerung der Blochschen Gleichung mit einer longitudinalen Relaxationszeit τ_1 und einer transversalen Relaxationszeit τ_2 . Sie sind definiert durch

$$\frac{1}{\tau_1} = (a_1 + H^2 a_2) (\alpha_3 + H^2 \alpha_4) = \frac{\mu_0}{\psi_d} (a_1 + H^2 a_2) (\alpha_1 + H^2 \alpha_2), \quad (5.7)$$

$$\frac{1}{\tau_2} = a_1 \alpha_3 = \frac{\mu_0}{\psi} a_1 \alpha_1. \quad (5.8)$$

Damit läßt sich dann (5.6) in der vereinfachten Gestalt

$$\frac{d\boldsymbol{\sigma}}{dt} - \mu_0 \alpha_1 \boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{H} = -\frac{1}{\tau_2} (\boldsymbol{\sigma} - \psi \mathbf{H}) - \left(\frac{1}{\tau_1} - \frac{1}{\tau_2} \right) ((\boldsymbol{\sigma} - \psi \mathbf{H}) \cdot \mathbf{H}) \mathbf{H} \quad (5.9)$$

schreiben.

Die thermodynamische Stabilität verlangt, daß τ_1 und τ_2 beide positiv sind; dies führt unter Berücksichtigung von (5.5) auf

$$\psi \alpha_1 > 0, \quad \psi_d (\alpha_1 + H^2 \alpha_2) > 0. \quad (5.10)$$

Für das Verhältnis der transversalen zur longitudinalen Relaxationszeit ergibt sich

$$\frac{\tau_2}{\tau_1} = \frac{\psi}{\psi_d} \left(1 + H^2 \frac{a_2}{a_1} \right) \left(1 + H^2 \frac{\alpha_2}{\alpha_1} \right). \quad (5.11)$$

Dieses Verhältnis wird also durch drei Faktoren bestimmt, von denen der erste bei konstantem γ das Verhältnis der Suszeptibilität zur differentiellen Suszeptibilität ist. Der zweite Faktor enthält nur die thermodynamischen Größen α_1 und α_2 , der dritte Faktor enthält nur die phänomenologischen Koeffizienten a_1 und a_2 .

Wir nehmen an, daß die transversale Relaxationszeit im Grenzfall $H \rightarrow 0$ nicht unendlich wird und daß ψ von Null verschieden bleibt. Dann folgt aus (5.8) $a_1 \neq 0$, $\alpha_1 \neq 0$. Unter dieser Voraussetzung werden die longitudinale und die transversale Relaxationszeit nach (5.11) für $H \rightarrow 0$ einander gleich, da dann $\psi_d \rightarrow \psi$.

Der Spezialfall der Blochschen Gleichung ergibt sich mit den Annahmen (2.13), also mit $\alpha_1 = \gamma$, $\alpha_2 = 0$. Die entsprechenden Vereinfachungen sind an den verstehenden Gleichungen leicht vorzunehmen.

6. Ergänzungen und Verallgemeinerungen

Wir haben darauf verzichtet, die phänomenologischen Gleichungen in voller Allgemeinheit niederzuschreiben. Dies kann in bekannter Weise durchgeführt werden. Es ist nur zu beachten, daß die phänomenologischen Koeffizienten im Prinzip von allen Zustandsvariablen, d.h. von s , ρ , \mathbf{E} , \mathbf{H} , $\boldsymbol{\sigma}$ abhängen können. Von der Variablen $\boldsymbol{\sigma}$ kann man bei den hier betrachteten kleinen Abweichungen vom thermodynamischen Gleichgewicht allerdings absehen. Aber auch so bleibt noch eine sehr große Mannigfaltigkeit von Termen und möglichen Quereffekten, da die phänomenologischen Koeffizienten auch Vektoren und Tensoren sein können, die man aus \mathbf{E} und \mathbf{H} aufbauen kann. Das Curiesche Gesetz, wonach im isotropen Medium beispielsweise ein Vektor linear nur von einem Vektor abhängen kann, gilt ja nur dann, wenn keine anderen Vektoren für die Formulierung einer solchen Abhängigkeit zur Verfügung stehen. In unserem Falle könnte etwa der Vektor $\mathbf{J} - \mathbf{E}' \times \mathbf{H}'$ sehr wohl auch von dem Tensor $\frac{\partial v_i}{\partial x_k} + \frac{\partial v_k}{\partial x_i}$, nämlich über den Vektor $E_k \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_k} + \frac{\partial v_k}{\partial x_i} \right)$, abhängen.

Wir wollen hier nicht näher darauf eingehen, ob solche Terme von einer zu berücksichtigenden Größenordnung sind, sondern nur einige zu erwartende oder prinzipiell mögliche Effekte aufzählen. Ein solcher Effekt ist die Diffusion des inneren Drehimpulses (Spindiffusion) und als Quereffekt eine Thermodiffusion des inneren Drehimpulses. Auch Quereffekte zwischen der Diffusion des inneren Drehimpulses und der inneren Reibung können bestehen, obwohl sie vermutlich ebenso schwer beobachtbar sein dürften wie die chemische Viskosität.

Ein interessanter Effekt, der in unseren Gleichungen enthalten ist, ist die Kerninduktion in einem mit einer Winkelgeschwindigkeit ω

gleichförmig rotierenden fluiden Medium; dann ist $\mathbf{A} - \frac{1}{2} \text{rot } \mathbf{v} = \mathbf{A} - \boldsymbol{\omega}$. Für hinreichend kleine Winkelgeschwindigkeiten können die thermodynamischen Beziehungen des Abschnitts 2, die kleine Gleichgewichtsabweichungen und damit kleine Affinität \mathbf{A} voraussetzen, durchaus noch angewandt werden. Dieser Fall ist im übrigen wohl zu unterscheiden von dem des rotierenden Koordinatensystems im ruhenden Medium.

Mehrere Verallgemeinerungen der entwickelten Theorie sind leicht durchzuführen. Solche sind die Übertragung auf elastische Materialien und auf Medien, die mehrere Komponenten enthalten, aber auch auf Medien mit mehreren zu unterscheidenden Zuständen des inneren Drehimpulses.

Eine wichtige Verallgemeinerung ist die relativistische Formulierung der gegebenen Theorie. Erst sie gibt eine konsistente Vereinigung der Maxwellschen Gleichungen mit den dynamischen Eigenschaften des Mediums und erlaubt die Berechtigung der gemachten Vernachlässigungen zu prüfen. Wir geraten damit in wichtige andere Fragestellungen, beispielsweise in die Diskussion, ob der Abrahamsche oder der Minkowskische Energieimpulstensor des elektromagnetischen Feldes der richtige ist. Mit diesen Fragen haben wir uns an anderer Stelle auseinandergesetzt².

² MEIXNER, J.: Relativistic Thermodynamics of Irreversible Processes in a One Component Fluid in the Presence of Electromagnetic Fields. Report, 1961. The Radiation Laboratory, Department of Electrical Engineering, The University of Michigan.

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Mainz

Herstellung und Nachweis polarisierter Elektronenstrahlen durch zweimalige Streuung von Glühelctronen kleiner Energie (1–2 keV) an Hg-Atomstrahlen *

Von

H. DEICHSEL

Mit 8 Figuren im Text

(Eingegangen am 24. Juni 1961)

Beams of electrons of low energy (1 to 2 keV) are elastically scattered twice by atomic beams of mercury. A maximum intensity asymmetry of $200\delta = 31 \pm 5$ was observed for double 90° scattering of 1500 eV electrons.

A. Einleitung

Nach verschiedenen, fehlgeschlagenen Versuchen anderer Autoren stellten erstmalig SHULL, CHASE und MYERS¹ einen polarisierten Elektronenstrahl her. Hiermit wurde die Mottsche Theorie über die Elektronendoppelstreuung an schweren Kernen bei höheren Elektronenenergien bestätigt, d.h., der Spin des Elektrons an freien Elektronen nachgewiesen. Diese Untersuchungen sind inzwischen von mehreren Autoren fortgeführt worden, worüber der zusammenfassende Bericht von TOLHOEK² Auskunft gibt.

Weniger beachtet wurde bisher dagegen eine theoretische Arbeit von MASSEY und MOHR³, die eine Erweiterung der Mottschen Streutheorie auf kleine Elektronenenergien darstellt. MASSEY und MOHR gingen vom Hartree-Feld des Atoms aus und fanden überraschenderweise, daß bei kleinen Elektronenenergien und zweimaliger Streuung unter 90° wesentlich ausgeprägtere Polarisierungseffekte auftreten sollten, als die von MOTT für höhere Energien errechneten und bisher gemessenen. In einer neueren Arbeit benutzten MOHR und TASSIE⁴ ein durch Exponentialfunktionen angenähertes Streufeld und untersuchten im Energiebereich von 0,9 bis 121 keV auch die Abhängigkeit der Intensitätsasymmetrie vom Streuwinkel (Fig. 1). Die von MASSEY und MOHR berechnete Intensitäts-

* Herrn Professor Dr. K. BECHERT zum 60. Geburtstag gewidmet.

¹ SHULL, C. G., C. T. CHASE and F. E. MYERS: Phys. Rev. **63**, 29 (1943).

² TOLHOEK, H. A.: Rev. Mod. Phys. **28**, 277 (1956).

³ MASSEY, H. S. W., and C. B. O. MOHR: Proc. Roy. Soc. Lond. A **177**, 341 (1941).

⁴ MOHR, C. B. O., and L. J. TASSIE: Proc. Phys. Soc. Lond. A **67**, 711 (1954).

asymmetrie hängt offenbar mit den Interferenzerscheinungen zusammen, die im Gebiet kleiner Elektronenenergien auftreten: starke Abhängigkeit der Winkelverteilung der gestreuten Elektronen — auch bei großen Streuwinkeln — von der Elektronenenergie.

Die unter 90° gestreute Intensität steht bei MASSEY und MOHR im Nenner eines Ausdrucks für die Größe der Intensitätsasymmetrie. Danach wäre ein Maximum der Asymmetrie für eine Elektronenenergie zu erwarten, bei der die Winkelverteilung der gestreuten Elektronen ein Minimum bei 90° besitzt. Dieser Zusammenhang bestätigt sich in den vorliegenden Messungen.

Eine wesentliche Schwierigkeit bei dieser Messung bildete der zuverlässige Nachweis einer geringen Intensität von elastisch gestreuten Elektronen kleiner Energie (einige Elektronen pro Sekunde), die zwangsläufig durch die Realisierung der Forderungen von MOTT bzw. MASSEY und MOHR auftrat, nämlich:

a) Einzelstreuung, b) Streuung an schweren Kernen, c) nur elastische Streuung. Da eine Nachbeschleunigung der Elektronen zwecks Registrierung mit Zählrohren im vorliegenden Fall

eine schwer zu kontrollierende Fehlerquelle dargestellt hätte, erfolgte der Nachweis mit Sekundärelektronenvervielfachern.

Zu a): Die Einzelstreuung von 1 bis 2 keV-Elektronen läßt sich nicht mehr an Folien durchführen, da Elektronen dieser Energie auch die dünnsten, noch herstellbaren Folien nicht durchdringen. Deshalb wurden Atomstrahlen als Streuer benutzt. Ihre „regelbare Teilchendichte“ gibt die Möglichkeit, prinzipiell Störungen durch Vielfachstreuung auszuschalten.

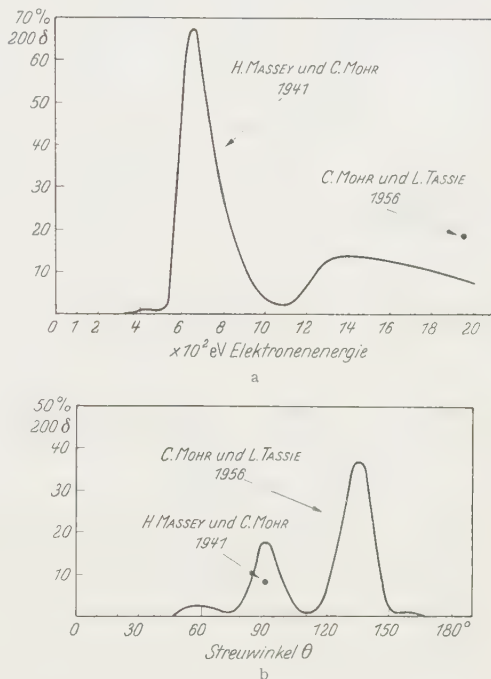


Fig. 1. Errechnete prozentuale Intensitätsasymmetrie nach zweimaliger elastischer Streuung an Goldatomen bei kleinen Elektronenenergien. a Als Funktion der Elektronenenergie nach MASSEY und MOHR (Hartree-Feld; $2 \times 90^\circ$ -Streuung). $2 \times 90^\circ$ -Streuung an Gold. b Als Funktion des Streuwinkels nach MOHR und TASSIE (durch Exponentialfunktionen angenähertes Streufeld; Doppelstreuung an Gold, Elektronenenergie 1950 eV)

Zu b): Sowohl MASSEY und MOHR als auch MOHR und TASSIE führten ihre Rechnungen für das Goldatom durch. Wie sich in Vorversuchen zeigte, bereiten aber Polarisationsversuche mit Goldatomstrahlen als Streuer wegen des kleinen Dampfdruckes von Gold erhebliche experimentelle Schwierigkeiten. Daher wurde *Quecksilber* verwendet, das sich durch ein zusätzliches 6s-Elektron in der P-Schale vom Goldatom unterscheidet.

Zu c): Die Trennung der *elastisch gestreuten Elektronen* von den unelastisch gestreuten und von Sekundärelektronen erfolgte mit Hilfe einer elektrostatischen Einzellinse.

B. Versuchsanordnung

Die Rezipienten für Streustufe I und Streustufe II bestanden aus Messing und wurden jeder für sich auf etwa 10^{-6} Torr evakuiert. Wie

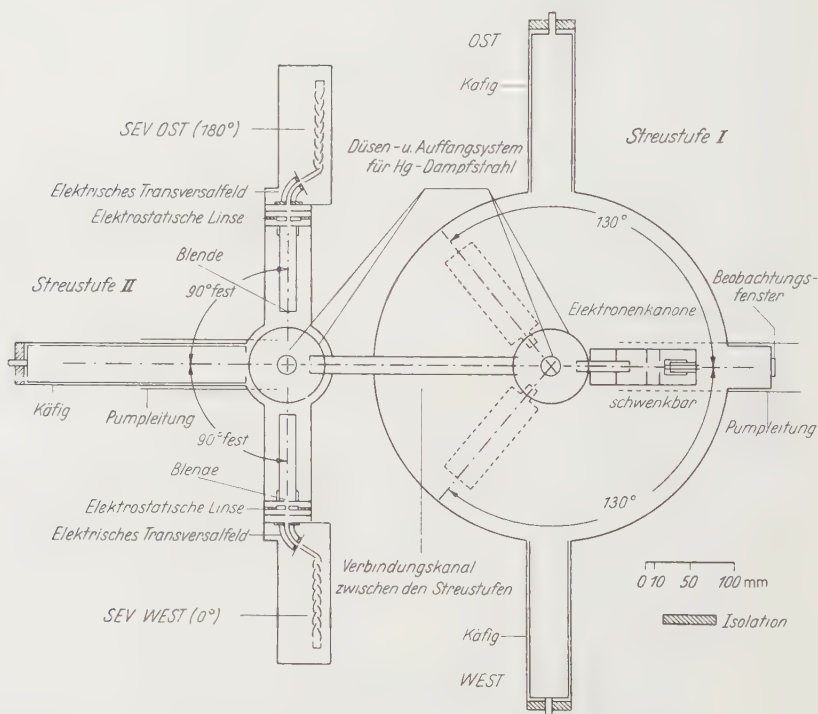


Fig. 2. Maßstäbliche Skizze der Versuchsanordnung in Aufsicht. Erdfeldkompensation, elektrische Versorgung und Zusatzgeräte sind nicht mit eingezeichnet

die maßstäbliche Skizze in Fig. 2 zeigt, war die Streustufe II nur durch den Verbindungskanal mit einer Blende von 9 mm \varnothing für die gestreuten Elektronen aus Streustufe I zu erreichen. Durch diese Maßnahme

wurden die im Streuraum der Stufe I entstehenden Ionen und UV-Quanten weitgehend vom Streuraum der Stufe II ferngehalten. Die Elektronenkanone in Streustufe I konnte um die Achse des Hg-Atomstrahls geschwenkt werden. Diese Anordnung gestattete, apparativ bedingte Asymmetrien zu kontrollieren, vgl. C 4. Im Zentrum der Streustufe II befand sich ein Hg-Atomstrahl gleicher Art wie in Stufe I. Die an diesem unter dem festen Streuwinkel von 90° elastisch gestreuten Elektronen wurden mit dem SEV WEST (0°) und SEV OST (180°) gleichzeitig registriert. Hierdurch war die Möglichkeit gegeben, bei der Berechnung der Intensitätsasymmetrie 200δ Dichteschwankungen von Atomstrahlen und Elektronenstrahl zu eliminieren, vgl. C 4. Bevor die Elektronen die erste Dynode der beiden SEV erreichten, durchliefen sie je einen Analysator, der aus einem Blendensystem (Öffnungswinkel 1°), aus einer elektrostatischen Linse und einem elektrischen Transversalfeld von 60° bestand. Die beiden Analysatoren waren symmetrisch gebaut. Mit dem Käfig in Streustufe II wurde die Intensität des Streustrahls aus Stufe I kontrolliert. Die Achsen der Analysatoren bildeten miteinander einen Winkel von 180° und mit der Atomstrahlachse und der Achse des Verbindungskanal einen Winkel von 90° .

1. Streustufe I (Fig. 3). Die *Elektronenkanone* (Kathode und „Wehnelt-Zylinder“ auf gleichem negativen Potential, alle anderen Blenden geerdet) saß auf dem drehbaren Arm R, der die Zuleitungen aufnahm und als Abschirmung diente. Der Elektronenstrahl verließ die Kanone durch einen Kanal mit Blenden von 6 mm \varnothing , besaß einen Öffnungswinkel von 6° und wurde bei 90° -Stellung („WEST und OST“) in einem Käfig aufgefangen (vgl. Fig. 2).

Der *Hg-Atomstrahl* trat aus einer Düse* aus und besaß im Streuraum etwa 1 cm Durchmesser**. Nach Verlassen des Streuraums gelangte der Hg-Atomstrahl in einen wassergekühlten, vernickelten Kupferzylinder, aus dem er kondensiert zum Siedegefäß zurückfloß. Das in den Streuraum ragende Rohrende mit der Düse trug außen eine Abschirmung aus Mo-Blech und befand sich in der Achse eines mit flüssiger Luft gekühlten Mantels. Düse und Elektronenkanone ließen sich so justieren, daß für jeden Einschußwinkel die Achsen von Elektronenstrahl und Atomstrahl sich senkrecht schnitten.

2. Streustufe II (Fig. 2). Die *elektrostatische Einzellinse* ließ nur elastisch gestreute Elektronen durch. Die Linsenmittelblende ($2 \times 24 \text{ mm}^2$) war mit der Kathode der Elektronenkanone verbunden und konnte bis

* Vorversuche zeigten, daß die Form einer „Abschmelzstelle“, wie sie im Vakuumröhrenbau üblich ist, große Ähnlichkeit mit einer Lavaldüse besitzt.

** Geschätzt aus Größe der Leuchtzone, die bei Einschuß von Elektronen ziemlich scharf begrenzt war.

zu 15 V gegen Kathode negativ gemacht werden. Eintrittsblende und Austrittsblende (beide $1 \times 8 \text{ mm}^2$) waren geerdet. Da bei Elektronen-

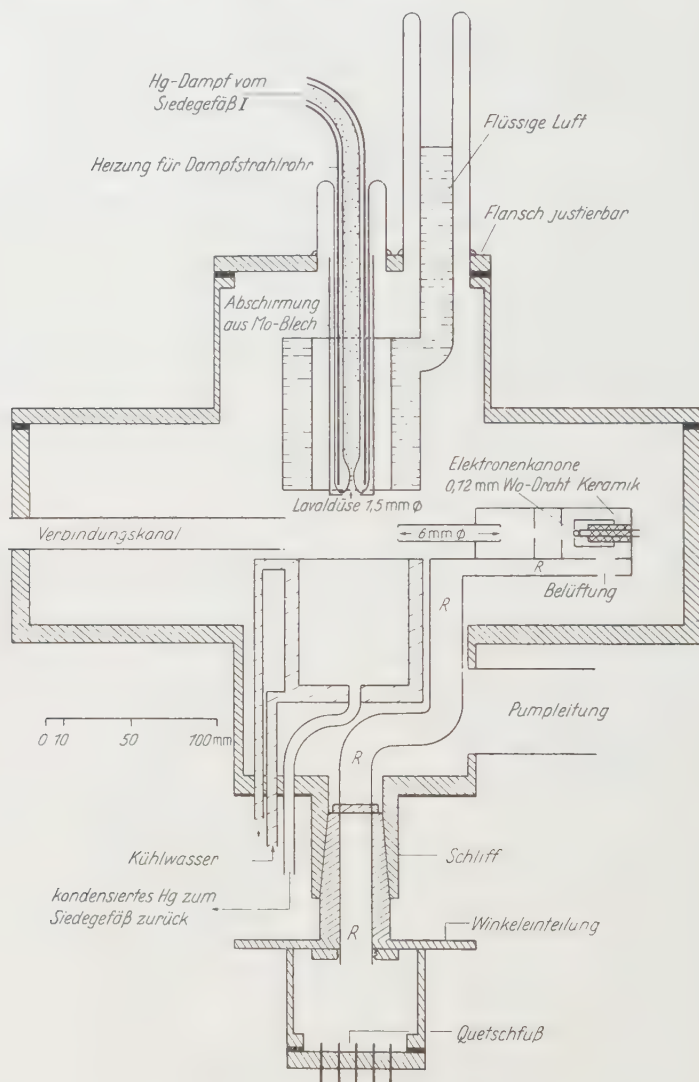


Fig. 3. Maßstäbliche Skizze der Streustufe I. Das Siedegefäß für Quecksilber ist nicht mit eingezeichnet

streuung an Quecksilber der kleinste Energieverlust durch Anregung der Resonanzlinie 4,9 eV beträgt, wurde das Potential der Mittelblende stets so gewählt, daß die Linse für Elektronen mit mehr als 4 eV Energieverlust einen Elektronenspiegel darstellte. Wegen der gemeinsamen

Speisung der elektrostatischen Linsen und der Elektronenkanone aus der gleichen Spannungsquelle wirkten sich eventuelle Schwankungen dieser Spannungsquelle auf die Durchlaßeigenschaften der elektrostatischen Linsen nicht aus. Über Einzelheiten der Konstruktion und der Funktion der verwendeten Linsen vgl. KECK und DEICHSEL⁵.

Das *elektrische Transversalfeld* von 60° (Sollkreisradius $r = 22,5$ mm) verhinderte den Eintritt von Ionen und Lichtquanten in den SEV.

Der *Sekundärelektronenvervielfacher* war nach Angaben von ALLEN⁶ gebaut. Damit seine Nachweisempfindlichkeit sich infolge des Restdampfdruckes von Hg nicht änderte, wurden die Cu-Be-Dynoden kräftig oxydiert (Ausbeutefaktor etwa 2,5 bei 220 V). Die notwendige Gesamtverstärkung von 10^6 bis 10^7 wurde mit 15 Stufen erreicht. Der Elektroneneinschuß erfolgte durch einen feldfreien Kanal (vgl. Fig. 2), der zusammen mit der ersten Dynode auf Erdpotential lag. Der SEV lieferte am Ausgang Spannungsimpulse von etwa 100 mV. Die Ausgangsimpulse des SEV liefen über einen Kathodenfolger, passierten ein Differenzierglied und wurden nach 10^3 -facher Verstärkung elektronisch gezählt. Die Zähldauer programmierte ein elektronischer Zeitgeber.

Die Ansprechwahrscheinlichkeiten der beiden SEV gingen grundsätzlich nicht in die spätere Messung ein (vgl. Abschnitt C 1). Trotzdem war es wünschenswert, daß sie wenigstens annähernd übereinstimmten. Wie weitgehend dies der Fall war, ist aus Fig. 4 zu ersehen, in der als Beispiel die Zählrate von SEV WEST und SEV OST für 500 eV-Elektronen nach zweimaliger 90° -Streuung als Funktion der Stromstärke der Primärelektronen in Streustufe I aufgetragen sind. Die Differenz zwischen den Zählraten von SEV WEST und SEV OST betrug danach 4%.

C. Auswertung der Versuchsdaten, Fehlerbetrachtungen

Fig. 5 und die nachfolgenden Angaben sollen zeigen, wie die Intensitätsasymmetrie aus den Meßwerten ermittelt wurde und wie groß dabei der Meßfehler war.

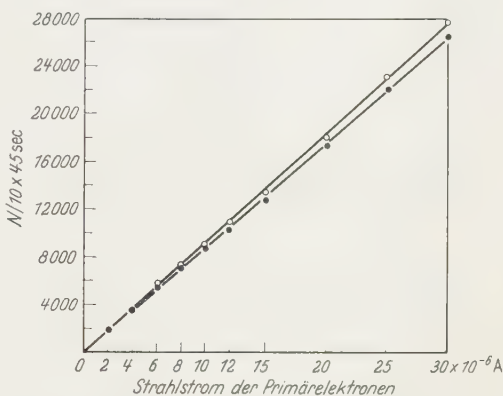


Fig. 4. Elastische $2 \times 90^\circ$ -Elektronenstreuung (500 eV) an Hg-Atomstrahlen. Zählraten von SEV WEST und SEV OST als Funktion des Strahlstroms der Primärelektronen. $\circ-\circ-\circ$ SEV WEST, $\bullet-\bullet-\bullet$ SEV OST

⁵ KECK, K., u. H. DEICHSEL: *Optik* **17**, 401 (1960).

⁶ ALLEN, J. S.: *Rev. Sci. Instrum.* **18**, 739 (1947).

1. Definitionen:

 W = Zählrate des SEV WEST O = Zählrate des SEV OSTIndizes: w und o betreffen die Stellung der Elektronenkanone in Stufe I, vgl. Fig. 5 δ = Maß für eventuell vorhandene Asymmetrie infolge Polarisierung

$$a = \frac{\text{apparativ bedingte Asymmetrie WEST}}{\text{apparativ bedingte Asymmetrie OST}} \text{ in Stufe II}$$

(über apparativ bedingte Asymmetrien in Stufe I vgl. C 4).

2. Meßwerte (nach Abzug des Nulleffektes):

$$W_w, a \cdot O_w; \quad W_o, a \cdot O_o,$$

wobei

$$W_w = i_w(1 + \delta); \quad a \cdot O_w = a \cdot i_o(1 - \delta)$$

$$W_o = i_w(1 - \delta); \quad a \cdot O_o = a \cdot i_o(1 + \delta).$$

3. Zur Auswertung: Wir bilden den Ausdruck

$$A = \frac{W_w}{a \cdot O_w} \cdot \frac{a \cdot O_o}{W_o} = \frac{i_w}{a \cdot i_o} \cdot \frac{a \cdot i_o}{i_w} \cdot \frac{(1 + \delta)^2}{(1 - \delta)^2}$$

hieraus folgt für δ :

$$\delta = \frac{\sqrt{A} - 1}{\sqrt{A} + 1}$$

und für den üblicherweise aufgetragenen Ausdruck für die prozentuale Intensitätsasymmetrie:

$$200\delta = \frac{\sqrt{A} - 1}{\sqrt{A} + 1} \cdot 200\%.$$

4. Apparativ bedingte Asymmetrien durch WEST- oder OST-Stellung der Elektronenkanone in Stufe I konnten durch Messung derjenigen in Stufe I gestreuten Elektronenmenge festgestellt werden, die durch den Verbindungskanal in die Stufe II eintrat; der Käfig in Stufe II wurde bei dieser Messung durch den SEV OST mit Analysator ersetzt.

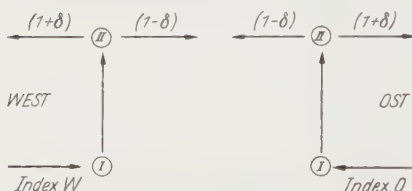


Fig. 5. Zur Auswertung der Versuchsdaten

Der Vergleich der Streuintensität für WEST- bzw. OST-Stellung der Elektronenkanone liefert: a) die Fixierung des Streuwinkels $\Theta = 0^\circ$ auf der Winkelskala. (Korrektur etwa 1°); b) die durch WEST- und OST-Stellung der Elektronenkanone apparativ bedingte Asymmetrie in Stufe II. Sie betrug etwa 4%. Diese Asymmetrie tritt aber bei allen Messungen auf und fällt bei der Berechnung von A in erster Näherung heraus; sie ändert nämlich nur den statistischen Fehler infolge einer Änderung der Zählrate. (Der statistische Fehler der einzelnen Meßwerte war $\leq 6\%$.) Außerdem fallen auch Schwankungen der Teilchendichte der Hg-Atomstrahlen und des primären Elektronenstrahls bei der Berechnung von A in erster Näherung heraus.

Bei Drehung der Elektronenkanone erhält man die Winkelverteilung der in Stufe I elastisch gestreuten Elektronen*. (Beispiel in Fig. 6.) Solche Winkel-

* Die vollständige Wiedergabe der Winkelverteilungen für Hg wird demnächst gemeinsam mit Winkelverteilungen an anderen schweren Atomen durch E. REICHERT erfolgen.

verteilungen wurden bereits von ARNOT⁷ in Hg-Dampf, aber nur bis 800 eV gemessen. Im Überschneidungsbereich (500 bis 800 eV) stimmen die Winkelverteilungen mit den hier gemessenen überein, woraus hervorgeht, daß es sich auch in der vorliegenden Arbeit um Streuung am *Einzelatom* handelt.

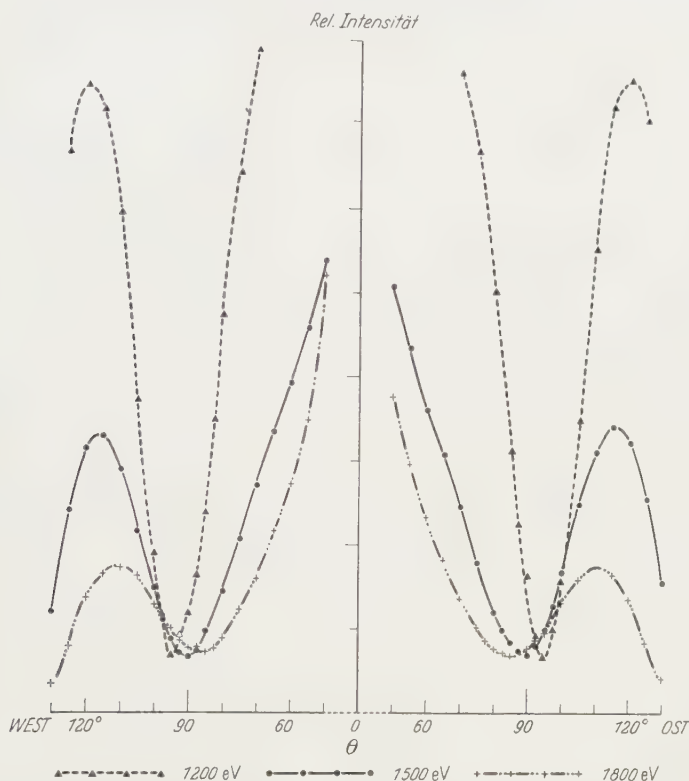


Fig. 6. Winkelverteilung der am Hg-Atomstrahl gestreuten Elektronen als Funktion der Elektronenenergie. Die Teilchendichte im Hg-Atomstrahl betrug etwa $2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$.

5. *Elektroneneinzelstreuung in den Hg-Atomstrahlen.* Damit nach zweimaliger Streuung genügend Intensität für die Messung der Polarisation übrig blieb, wurde in den Hg-Atomstrahlen mit einer Teilchendichte von etwa 10^{14} cm^{-3} gearbeitet. Das würde der Dicke einer „Hg-Folie von etwa 0,1 monoatomaren Lagen“ entsprechen, wodurch in dem benutzten Streuwinkelbereich Einzelstreuung gewährleistet ist.

6. *Der Nulleffekt.* Der reine Nulleffekt der SEV betrug etwa 30 Impulse pro Minute. Er erhöhte sich auf etwa 65 Impulse pro Minute, wenn alle Betriebsspannungen der Meßapparatur außer der Heizspannung für die Kathode eingeschaltet waren. Bei laufendem Elektronenstrahl änderte sich dann der Nulleffekt praktisch nicht mehr (Zunahme $\leq 2\%$).

⁷ ARNOT, F.L.: Proc. Roy. Soc. Lond. **130**, 655 (1931).

D. Meßergebnisse

Die Intensitätsasymmetrie 200δ nach zweimaliger elastischer Elektronenstreuung wurde a) als Funktion der Elektronenenergie und b) als Funktion des Streuwinkels

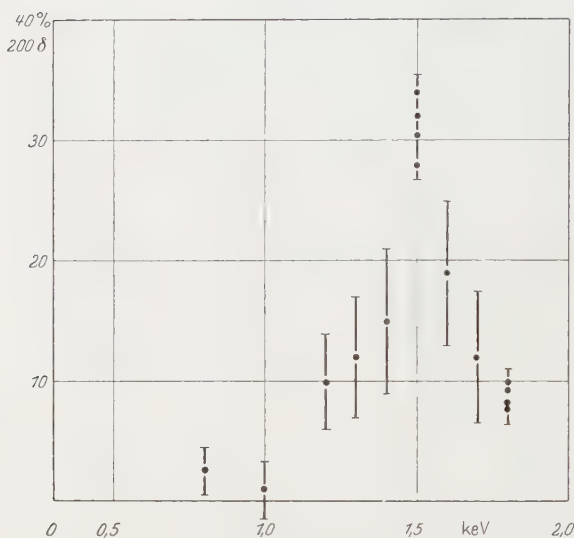


Fig. 7. Elastische $2 \times 90^\circ$ -Elektronenstreuung an Hg-Atomstrahlen. Intensitätsasymmetrie 200δ als Funktion der Elektronenenergie

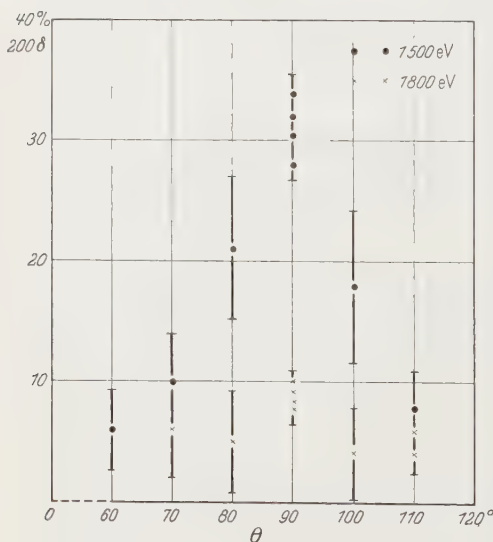


Fig. 8. Elastische $2 \times 90^\circ$ -Elektronenstreuung an Hg-Atomstrahlen. Intensitätsasymmetrie 200δ als Funktion des Streuwinkels in Streustufe I (Parameter: Elektronenenergie)

gemessen. Die Existenz der gefundenen Intensitätsasymmetrie wurde durch Kontrollexperimente gesichert, bei denen durch Änderung nur eines Parameters die Polarisation verschwindet, z.B. durch Änderung der Elektronenenergie oder des Streuwinkels.

Fig. 7 zeigt die Abhängigkeit der Asymmetrie 200δ von der Elektronenenergie für den festen Streuwinkel $\Theta = 90^\circ$. Die Kurve erreicht für 1500 eV-Elektronen ein Maximum mit 200δ

$= 31 \pm 5$ und fällt im untersuchten Energiebereich zu kleineren und größeren Elektronenenergien hin ziemlich steil ab. Für 1500 eV-Elektronen liegt aber das Minimum der Winkelverteilung gerade bei 90° (vgl. Fig. 6).

Fig. 8 zeigt 200δ für 1500 eV- und 1800 eV-Elektronen als Funktion des Streuwinkels Θ in Stufe I. Der Streuwinkel in Stufe II betrug bei allen Messungen 90° . Im untersuchten Winkelbereich durchläuft 200δ für 1500 eV-Elektronen ein deutliches Maximum bei 90° , während für 1800 eV-Elektronen die Winkelabhängigkeit von 200δ wegen des kleineren Polarisationsgrades, vgl. Fig. 7, nur schwach in Erscheinung tritt.

E. Zusammenfassung

Die Untersuchung hat gezeigt, daß auch im Gebiet kleiner Elektronenenergien Elektronenpolarisation einwandfrei nachweisbar ist. Die bei größeren Elektronenenergien üblichen Streufolien müssen allerdings durch Atomstrahlen und die Zählrohre durch Sekundärelektronenvervielfacher ersetzt werden. Ferner muß eine Trennung der elastisch gestreuten Elektronen von den unelastisch gestreuten Elektronen durchgeführt werden, die bei größeren Energien nicht erforderlich ist. Nach zweimaliger elastischer 90° -Streuung an Hg-Atomstrahlen wurde eine maximale Intensitätsasymmetrie von 31 ± 5 für eine Elektronenenergie von 1500 eV gefunden: also für diejenige Elektronenenergie, für die die Winkelverteilung der an Hg gestreuten Elektronen bei 90° ein Minimum besitzt. Der gemessene Wert von 200δ ist etwa doppelt so groß wie die bisher gemessenen Intensitätsasymmetrien für $2 \times 90^\circ$ -Streuung bei größeren Elektronenenergien. Die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit lassen sich nicht direkt mit den theoretischen Kurven von MASSEY und MOHR und MOHR und TASSIE in Fig. 1 vergleichen, da diese Kurven für die Streuung an Gold gerechnet wurden; sie müssen für Quecksilber modifiziert werden.

Herrn Professor Dr.-Ing. R. KOLLATH danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit und für zahlreiche Diskussionen, Herrn Dipl.-Phys. E. REICHERT für tatkräftige Hilfe bei der Durchführung der Arbeit.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft danke ich für die Bereitstellung eines Diskriminators und eines 5 kV-Netzgerätes, dem Bundesministerium für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft für die Überlassung eines elektronischen Zählgerätes mit Drucker.

Aus dem II. Physikalischen Institut der Universität Göttingen

Zum experimentellen Nachweis von Zweiquantenzerfall beim 0^+-0^+ -Übergang des Zr^{90}

Von

H. LANGHOFF und H.-H. HENNIES

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 4. Mai 1961)

With a scintillation coincidence spectrometer it has been tried to detect double quantum emission in the 0^+-0^+ transition of the first excited level of Zr^{90} . An effect, probably due to double quantum emission gives $2 \cdot 10^{-3}$ for this decay mode. This level is reached by β -decay of Y^{90} . From a measurement of the positron annihilation radiation it follows, that $(3,4 \pm 0,4) \cdot 10^{-5}$ pairs deexciting this level are created per β -decay of Y^{90} .

1. Einleitung

Angeregte Niveaus von Atomkernen zerfallen gewöhnlich durch Emission von γ -Quanten, Konversionselektronen oder bei genügend großer Energie von Elektron-Positron-Paaren. Außerdem ist die gleichzeitige Emission von zwei γ -Quanten mit kontinuierlichem Energiespektrum möglich, deren Gesamtenergie gleich der Übergangsenergie ist. Die Wahrscheinlichkeit für diesen Prozeß ist allerdings im allgemeinen um Größenordnungen kleiner.

Theoretische Vorhersagen für die Häufigkeit eines solchen Zweiquantenzerfalls wurden schon früh von GÖPPERT-MAYER¹ und SACHS² gemacht. Nach den Ergebnissen neuerer Arbeiten von GRECHUKHIN³, EICHLER und JAKOB⁴ und EICHLER⁵ erschienen experimentelle Untersuchungen zu dieser Frage wünschenswert.

Für den experimentellen Nachweis des Zweiquantenzerfalls kommen in erster Linie Zerfälle in Frage, bei denen der direkte γ -Übergang stark verzögert, oder durch Auswahlregeln völlig verboten ist. Bei $M4$ -Übergängen von $\text{Xe}^{131\text{m}}$ und $\text{Ba}^{137\text{m}}$ haben ALVÄGER und RYDE⁶ und BEUSCH⁷ inzwischen Effekte gefunden, die durch Zweiquantenemission

¹ GÖPPERT-MAYER, M.: Ann. Physik **9**, 273 (1931).

² SACHS, R. G.: Phys. Rev. **57**, 194 (1940).

³ GRECHUKHIN, D. P.: J. Exp. Theor. Phys. **5**, 846 (1957).

⁴ EICHLER, J., u. G. JAKOB: Z. Physik **157**, 286 (1959).

⁵ EICHLER, J.: Z. Physik **160**, 333 (1960).

⁶ ALVÄGER, T., and H. RYDE: Phys. Rev. Letters **4**, 363 (1960); — Ark. Fysik **17**, 535 (1960).

⁷ BEUSCH, W.: Helv. phys. Acta **33**, 363 (1960).

gedeutet werden können. Untersuchungen von MCCALLUM u. Mitarb.⁸ an einem $E2$ -Übergang des C^{12} führten zu einem negativen Ergebnis.

Bei $0-0$ -Übergängen ist die direkte Emission nur eines γ -Quants völlig verboten. 0^+-0^- -Übergänge wären zum Nachweis des Zweiquantenzerfalls besonders geeignet, sind aber bisher nicht bekannt. 0^+-0^+ -Übergänge treten zwar häufig auf, sind aber meist von zahlreichen anderen Zerfällen begleitet. NESSIN⁹ untersuchte den 0^+-0^+ -Übergang des 3,35 MeV-Niveaus vom Ca^{40} und erhielt für einen möglichen Zweiquantenzerfall eine obere Grenze von 0,6% aller Zerfälle.

Von den anderen bisher bekannten 0^+-0^+ -Übergängen bietet der Zerfall des ersten angeregten Niveaus des Zr^{90} die relativ besten Voraussetzungen zum experimentellen Nachweis des Zweiquantenzerfalls. Dieses angeregte 0^+ -Niveau liegt bei 1,73 MeV und wird in $1,15 \cdot 10^{-4}$ aller β -Zerfälle des Y^{90} erreicht. Hauptsächlich

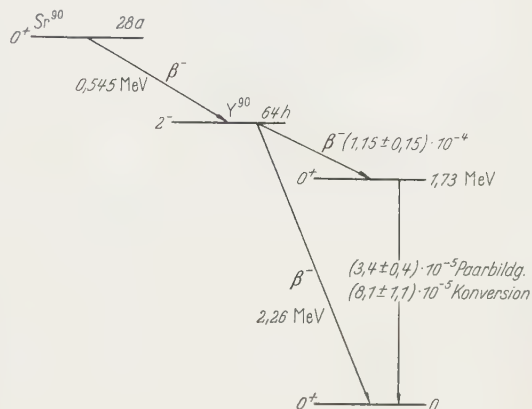


Fig. 1. Zerfallsschema des $Sr^{90}-Y^{90}$

zerfällt das Y^{90} in das Grundniveau des Zr^{90} (Fig. 1). Das angeregte 0^+ -Niveau zerfällt direkt in das Grundniveau unter Emission von Konversionselektronen oder Elektron-Positron-Paaren. Für das Auftreten von Zweiquantenzerfall wird von EICHLER und JAKOB⁴ ein maximaler Wert von 6% aller Zerfälle des Niveaus angegeben, während sich aus den Rechnungen von GRECHUKHIN³ etwa $5 \cdot 10^{-4}$ für diesen Wert ergeben.

2. Apparatur und Nachweismethode

Um die von der Zweiquantenemission stammenden γ -Quanten von den sehr viel häufigeren durch die β -Teilchen erzeugten Bremsquanten zu trennen, wurde ein Szintillations-Koinzidenzspektrometer benutzt. Das Y^{90} -Präparat befand sich zwischen zwei $5\text{ cm } \varnothing \times 5\text{ cm NaJ}$ -Kristallen. Als Multiplier fand der Typ RCA 6810 A Verwendung. Die benutzte elektronische Apparatur ist in Fig. 2 als Blockschaltbild dargestellt. Es handelt sich im Prinzip um eine übliche „Schnell-Langsam“-

⁸ MCCALLUM, G. J., D. A. BROMLEY and J. A. KUEHNER: Nuclear Phys. **20**, 382 (1960).

⁹ NESSIN, M.: CU (PNPL)-201 (1960).

Anordnung. Die schnelle Koinzidenz hatte ein Auflösungsvermögen von $5 \cdot 10^{-9}$ sec.

Im Falle einer Koinzidenz werden die beiden Tore *I* und *II* geöffnet, so daß die linear verstärkten Impulse von den beiden Multipliern in den Additionskreis gelangen können. Die koinzidenten Impulse werden in diesem Kreis addiert, das entstehende Summenspektrum wird mit einem 256 Kanal-Impulshöhenanalysator aufgenommen.

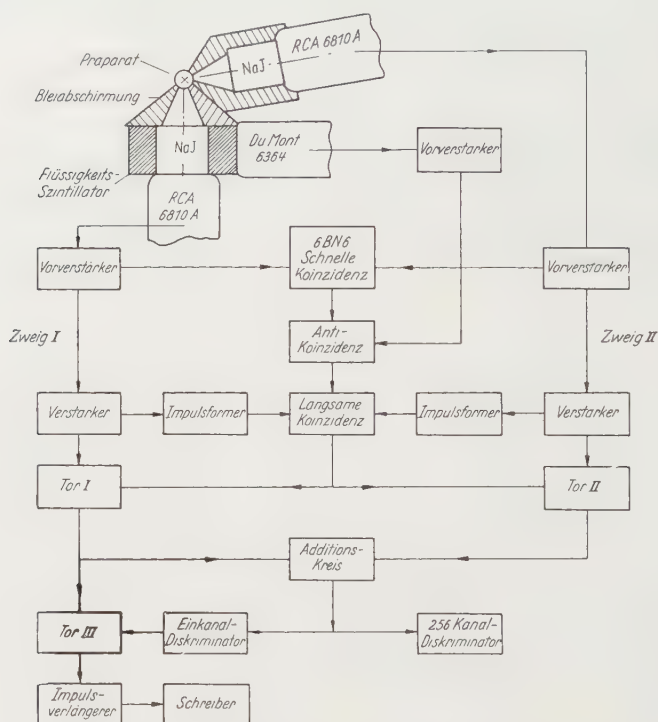


Fig. 2. Versuchsanordnung und Blockschaltbild der elektronischen Apparatur. Größe der NaJ-Kristalle: $5 \text{ cm} \times 5 \text{ cm} \varnothing$. Abstand des Präparats von jedem Kristall: $4,5 \text{ cm}$

Gelangen nun die beiden vom Zweiquantenzerfall stammenden γ -Quanten in die NaJ-Kristalle und werden dort beide durch Photoeffekt nachgewiesen, so müßte sich das als eine Linie bei der Übergangsenergie $1,73 \text{ MeV}$ im Summenspektrum zeigen. Da der Nachweis nicht vollständig durch Photoeffekt erfolgt, sollte außerdem im Summenspektrum unterhalb dieser Energie eine breite Compton-Verteilung erscheinen, deren Fläche von der Größenordnung der Linienfläche sein müßte.

Bilden die beiden Nachweisgeräte einen Winkel von 180° miteinander, so erscheint im Summenspektrum außerdem noch eine Linie bei $1,02 \text{ MeV}$, die von den beiden 511 keV γ -Quanten der Positronenvernichtungs-

strahlung aus dem Zerfall des 1,73 MeV Niveaus durch innere Paarbildung her stammt. Ein in einer solchen Anordnung aufgenommenes Summenspektrum gibt Fig. 3 wieder. Das Fehlen einer Linie bei 1,73 MeV zeigt bereits, wie wenig intensiv der Zweiquantenzerfall im Vergleich zur inneren Paarbildung auftritt. Für den Nachweis des Zweiquantenzerfalls ist es jedoch günstiger, die NaJ-Zähler unter einem Winkel von 100° anzuordnen. Dadurch werden unerwünschte Toröffnungen weitgehend ausgeschaltet, die durch die zahlreichen Koinzidenzen von der Vernichtungsstrahlung verursacht werden. Andererseits ist der Abstand der NaJ-Zähler groß genug, um durch genügend Blei zwischen den Zählern Koinzidenzen durch Streuung eines γ -Quants von einem NaJ-Kristall in den zweiten zu verhindern.

Die für die Messung benutzte Apparatur ist schematisch in Fig. 2 dargestellt. Das Ansprechvermögen der Apparatur wurde durch Aufnahme des Summenkoinzidenzspektrums eines Na^{22} -Präparats bekannter Stärke (Summenlinie bei $1,276 + 0,511 = 1,79$ MeV) bestimmt, das an die Stelle des Y^{90} -Präparats gebracht wurde.

Obwohl ohne Präparat nur zwei echte Koinzidenzen pro Minute auftraten, die von Höhenstrahlung und natürlicher Radioaktivität der Umgebung stammen, zeigte es sich bei den Messungen doch, daß dieser Untergrund insbesondere im interessierenden Bereich des Summenspektrums stark störte. Da eine Abschirmung der Zähler mit Blei und Beton völlig unwirksam blieb, wurde der eine NaJ-Kristall mit einem Flüssigkeitsszintillator als Antikoinzidenzabschirmung umgeben, dessen Impulse ein Öffnen der Tore I und II verhinderten. Mit dieser Anordnung konnte die Zahl der Untergrundkoinzidenzen auf ein Drittel vermindert werden.

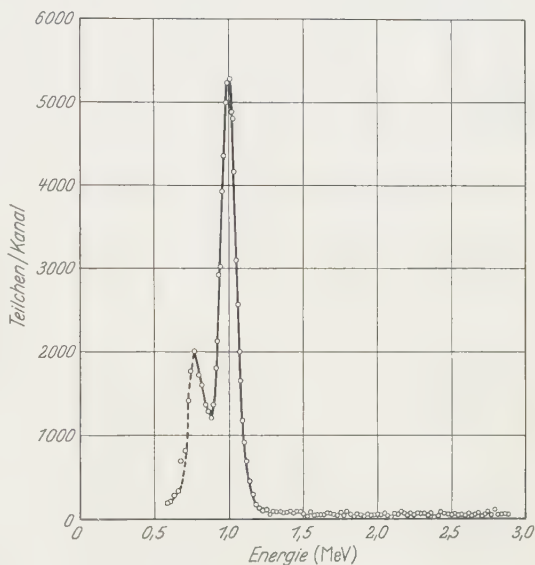


Fig. 3. γ -Summenspektrum des Y^{90} , entstanden durch Addition der in den beiden NaJ-Kristallen von zwei γ -Quanten gleichzeitig erzeugten Impulse. Die Zähler standen unter einem Winkel von 180° , daher tritt bei 1,02 MeV eine Linie auf, die von der Vernichtungsstrahlung der durch innere Paarbildung entstandenen Positronen herührt. Das Spektrum beginnt erst bei etwa 650 keV, da γ -Quanten mit kleiner Energie nicht registriert wurden.

3. Experimente

Als Präparat wurde Y^{90} verwendet, das sich im radioaktiven Gleichgewicht mit Sr^{90} befand. Es hatte eine Stärke von $370 \mu C$ und befand sich in einer 0,8 cm dicken Plexiglaskapsel.

Um zufällige Koinzidenzen durch die besonders bei niedrigen Energien zahlreichen Bremsquanten zu unterdrücken, wurden vor den beiden

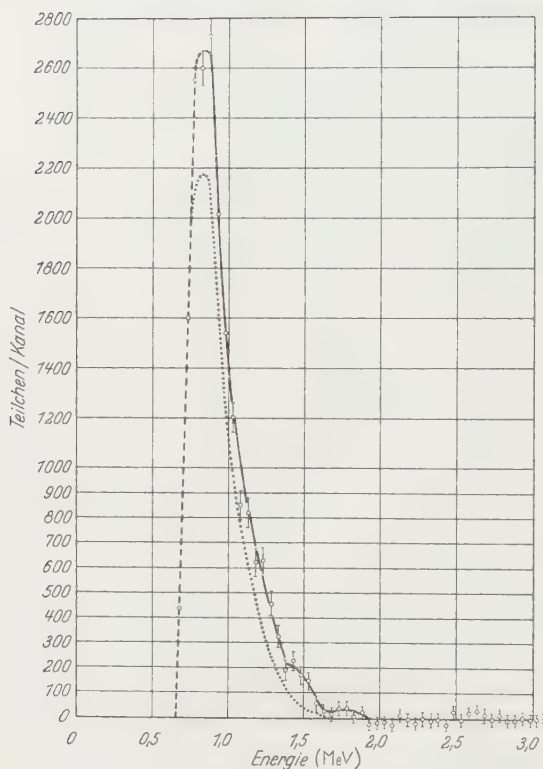


Fig. 4. Summenspektrum des Y^{90} , gemessen bei Anordnung der Zähler unter einem Winkel von 100° . Von den gemessenen Werten sind bereits natürlicher Untergrund und zufällige Koinzidenzen abgezogen. Die punktierte Kurve gibt das berechnete Spektrum wieder, das durch die gleichzeitige Emission von zwei Bremsquanten entsteht

tionen der Apparatur kontrolliert und eine Energieeichung vorgenommen. Um von diesem Spektrum das durch zufällige Koinzidenzen entstehende Spektrum abziehen zu können, wurde das Summenspektrum der zufälligen Koinzidenzen dadurch bestimmt, daß die Impulse in einem Zweig der schnellen Koinzidenzstufe verzögert wurden. Zur Kontrolle dieser Methode wurde dieselbe Messung wiederholt, indem

Na J-Zählern Bleiabsorber von 1 mm Dicke angebracht. Außerdem wurden die Impulsformer (s. Fig. 2) so eingestellt, daß nur γ -Quanten mit Energien oberhalb 330 keV Koinzidenzimpulse auslösen konnten. Durch dieses Abschneiden geht nur ein geringer Teil der durch Zweiquantenzerfall entstehenden γ -Quanten für den Nachweis verloren, da vorausgesetzt werden darf, daß bei einem $0^+ - 0^+$ -Übergang unter Zweiquantenemission das entstehende kontinuierliche γ -Spektrum ein Intensitätsmaximum bei der halben zur Verfügung stehenden Übergangsenergie besitzt.

Das Spektrum der koinzidenten und addierten Impulse der beiden Na J-Zähler wurde 100 Std lang gemessen. Nach je 8 Std wurden alle Funk-

der eine NaJ-Zähler in einigen Metern Abstand von der eigentlichen Apparatur aufgebaut und mit einem zweiten Sr^{90} - Y^{90} -Präparat gleicher Stärke bestrahlt wurde. Ferner wurde das Summenspektrum der Koinzidenzen des Untergrundes, der durch Höhenstrahlung und natürliche Radioaktivität entsteht, aufgenommen.

Fig. 4 zeigt als Ergebnis das Summenspektrum der γ -Quanten vom Sr^{90} - Y^{90} nach Abzug der zufälligen Koinzidenzen und des Untergrundes. Es zeigt sich, daß dieses Spektrum bei einer Energie von 1,8 MeV endet. Bei 1,5 und 1,7 MeV treten Abweichungen vom sonst glatten Verlauf der Kurve auf, die möglicherweise durch Photo- und Compton-Effekt von durch Zweiquantenzerfall entstandenen γ -Quanten gedeutet werden können. Im Energieintervall von 1,65 bis 1,80 MeV, in dem die vom Zweiquantenzerfall herrührende Summenlinie liegen müßte, wurden in dem unkorrigierten Spektrum 400 Koinzidenzen beobachtet, davon stammen 100 vom Untergrund und 200 von zufälligen Koinzidenzen.

4. Diskussion

Für die insgesamt in 100 Std gemessenen verbleibenden 100 Koinzidenzen im Energiebereich zwischen 1,65 und 1,80 MeV gibt es folgende Erklärungsmöglichkeiten:

1. Zweiquantenzerfall beim 0^+-0^+ -Übergang des Zr^{90} .
2. Zerfall des 0^+ -Niveaus des Zr^{90} über eine schwache unbekannte $\gamma\gamma$ -Kaskade oder aber ein $\gamma\gamma$ -Kaskadenzerfall einer radioaktiven Verunreinigung des Präparats.
3. Gleichzeitige Emission zweier Bremsstrahlungsquanten bei der Abbremsung der vom Zerfall des Y^{90} stammenden Elektronen mit einer Maximalenergie von 2,2 MeV.
4. Streuung von Bremsquanten von einem NaJ-Kristall in den anderen.

Um die Möglichkeit zur Erklärung der Koinzidenzen durch eine $\gamma\gamma$ -Kaskade zu untersuchen, wurde bei der Messung des Summenspektrums gleichzeitig das Spektrum der Impulse des Zweiges I aufgezeichnet, und zwar jeweils nur dann, wenn die Summe der Impulse von I und II gerade etwa 1,7 MeV ergab. Im Rahmen der Meßgenauigkeit ließ sich kein Linienspektrum feststellen.

Die Emissionswahrscheinlichkeit zweier Bremsstrahlungsquanten bei der inneren und äußeren Abbremsung eines Elektrons wurde ähnlich der von BEUSCH⁶ angegebenen Näherungsmethode berechnet. Nach Berücksichtigung der Form des β -Spektrums des Y^{90} und der geometrischen Daten der Apparatur wurde das in Fig. 4 punktiert eingezeichnete

Summenspektrum ausgerechnet. Durch diesen Effekt erklärt sich zwar recht gut das Auftreten der vielen Koinzidenzen bei kleinen Energien, für die Koinzidenzen im Energiebereich oberhalb 1,5 MeV ist durch die doppelte Emission von Bremsstrahlung praktisch kein Beitrag zu erwarten. Nicht eindeutig ausschließen läßt sich allerdings die Möglichkeit, daß sich zu einer solchen Bremsstrahlungskoinzidenz mit kleiner Summenenergie zufällig ein weiteres Bremsquant hoher Energie addiert und so indirekt durch doppelte Bremsstrahlungsemission eine Summenkoinzidenz von 1,7 MeV Energie vorgetäuscht wird. Dagegen spricht allerdings, daß oberhalb von 1,8 MeV keine Koinzidenzen mehr beobachtet wurden.

Abschätzungen zeigen, daß die Streuung von Bremsquanten von einem NaJ-Kristall in den anderen mit nennenswerter Wahrscheinlichkeit Summenkoinzidenzen nur im Energiebereich unterhalb von 1 MeV ergibt.

Zusammenfassend kann danach festgestellt werden, daß die Messungen gewisse Anzeichen für das Auftreten von Zweiquantenzerfall des 0^+ -Niveaus beim Zr^{90} zeigen, daß aber ein eindeutiger Schluß nicht gezogen werden kann. Unter der Annahme, daß die gefundenen 100 Koinzidenzen durch Zweiquantenzerfall entstanden, kann mit dem Anspruchsvermögen der Apparatur ausgerechnet werden, daß das 0^+ -Niveau des Zr^{90} zu $(2,3 \pm 1,5) \cdot 10^{-3}$ durch Zweiquantenzerfall zerfällt*. Dieser Rechnung liegt zugrunde, daß das 1,73 MeV-Niveau des Zr^{90} zu 30% durch Paarbildung zerfällt, in $1,15 \cdot 10^{-4}$ aller Y^{90} -Zerfälle erreicht wird, und die beiden γ -Quanten des Zweiquantenzerfalls eine Winkelverteilung von $1 + \cos^2\theta$ haben. Der Wert für die Häufigkeit der Paarbildung ist der Messung von NESSIN⁹ entnommen, der für das Verhältnis von Konversionselektronenemission zu Paaremission angibt: $N_{\text{Konv.}}/N_{\text{Paar}} = 2,38 \pm 0,08$. Die absolute Zahl der pro β -Zerfall des Y^{90} auftretenden Paare wurde von GREENBERG und DEUTSCH¹⁰ zu $(3,6 \pm 0,9) \cdot 10^{-5}$ und von YUASA u. Mitarb.¹¹ zu $(5,4 \pm 0,8) \cdot 10^{-5}$ gemessen. Durch eine quantitative Auswertung der in Fig. 3 wiedergegebenen Meßkurve wurde die Wahrscheinlichkeit für die Entstehung eines Paares (nachgewiesen

* *Anmerkung bei der Korrektur:* Inzwischen erschien eine Arbeit von GORODETZKY et al. in *Compt. Rend.* **252**, 1132, nach der dieses 0^+ -Niveau zu $1,4 \cdot 10^{-3}$ unter Emission von zwei γ -Quanten zerfällt. Eine weitere Untersuchung von RYDE et al. ergab für das Verhältnis von Zweiquantenemission zu Elektronenkonversion $1,6 \cdot 10^{-3}$ (erscheint demnächst in *Phys. Rev. Lett.*). Die Übereinstimmung dieser Ergebnisse mit unseren wird noch besser, wenn berücksichtigt wird, daß mit verschiedenen Werten für das Verhältnis $N_{\text{Konv.}}/N_{\text{Paar}}$ gerechnet wurde.

¹⁰ GREENBERG, J. S., and M. DEUTSCH: *Phys. Rev.* **102**, 415 (1956).

¹¹ YUASA, T., J. LABERRIGUE-FROLOW and L. FEUVRAS: *J. Phys. Radium* **18**, 498 (1957).

durch die Positronenvernichtungsstrahlung) pro β -Zerfall des Y^{90} nochmals bestimmt. In Übereinstimmung mit GREENBERG und DEUTSCH¹⁰ ergab sich der Wert $(3,4 \pm 0,4) \cdot 10^{-5}$ Paarzerfälle/ β -Zerfall.

Zusammen mit dem von NESSIN⁹ angegebenen Intensitätsverhältnis für Paarbildung und Konversionselektronenemission beim Zerfall des 1,73 MeV-Niveaus des Zr^{90} ergibt sich, daß dieses Niveau beim β -Zerfall des Y^{90} zu $(1,15 \pm 0,15) \cdot 10^{-4}$ erreicht wird.

Für die Häufigkeit des Zweiquantenzerfalls vom 0^+ -Niveau des Zr^{90} ergibt sich so eine obere Grenze von $4 \cdot 10^{-3}$.

Für die Förderung dieser Arbeit und wertvolle Diskussionen danken wir Herrn Professor Dr. A. FLAMMERSFELD sehr. Gleichzeitig gilt unser Dank dem Bundesministerium für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft und dem Lande Niedersachsen für die zur Durchführung dieser Untersuchung bereitgestellten Mittel.

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Tübingen

Vermessung der Lamb-Verschiebung des $3^2S_{\frac{1}{2}}$ -Zustandes gegenüber dem $3^2P_{\frac{1}{2}}$ -Zustand am Wasserstoffatom

Von

HANS KLEINPOPPEN

Mit 8 Figuren im Text

(Eingegangen am 4. Mai 1961)

Mit einer Atomstrahl-Resonanzapparatur wurde die Verschiebung des $3^2S_{\frac{1}{2}}$ -Zustandes gegenüber dem $3^2P_{\frac{1}{2}}$ -Zustand am Wasserstoffatom vermessen. Durch Einstrahlung der Wasserstoff-Lyman- L_{β} -Linie konnte der $3^2P_{\frac{1}{2}}$ -Zustand der Atome eines Wasserstoff-Atomstrahls bevölkert werden. Gleichzeitig wurde ein elektrischer Dipol-Resonanzübergang zwischen dem $3^2P_{\frac{1}{2}}$ - und dem $3^2S_{\frac{1}{2}}$ -Zustand induziert. Der Nachweis des Resonanzüberganges geschah auf Grund der Abnahme der relativen Zahl der metastabilen Wasserstoffatome im $2^2S_{\frac{1}{2}}$ -Zustand, der durch Zerfall des $3^2P_{\frac{1}{2}}$ -Zustandes bevölkert wurde. Als Detektor für die metastabilen Wasserstoffatome diente der von LAMB und RETHERFORD angegebene Oberflächendetektor. Der gemessene Abstand der Terme $3^2P_{\frac{1}{2}}$ und $3^2S_{\frac{1}{2}}$ ergab sich in Frequenzeinheiten zu

$$\delta_H(3^2S_{\frac{1}{2}} - 3^2P_{\frac{1}{2}})_{\text{exp}} = (313,6 \pm 5,7) \text{ MHz}^*,$$

in Übereinstimmung mit dem von HARRIMAN theoretisch ermittelten Wert $\delta_H(3^2S_{\frac{1}{2}} - 3^2P_{\frac{1}{2}})_{\text{theor}} = (314,690 \pm 0,047) \text{ MHz}$ und außerdem mit der von LAMB und WILCOX experimentell bestimmten Verschiebung des $3^2S_{\frac{1}{2}}$ -Terms gegenüber dem $3^2P_{\frac{1}{2}}$ -Term für das Deuterium-Atom $\delta_D(3^2S_{\frac{1}{2}} - 3^2P_{\frac{1}{2}})_{\text{exp}} = (315,30 \pm 0,80) \text{ MHz}$, die theoretisch zu $\delta_D(3^2S_{\frac{1}{2}} - 3^2P_{\frac{1}{2}})_{\text{theor}} = 315,34 \text{ MHz}$ errechnet wurde.

I. Einleitung

Neben der genauen Vermessung des g -Faktors von freien Elektronen gehört die Vermessung der Verschiebung (Lambshift) des $2S_{\frac{1}{2}}$ -Terms gegenüber dem $2P_{\frac{1}{2}}$ -Term des Wasserstoffatoms zu den genauesten experimentellen Tests der quantenelektrodynamischen Effekte. Die diesbezüglichen Messungen von LAMB u. Mitarb.¹ führten dazu, daß die beobachtete Energiedifferenz zwischen dem $2S_{\frac{1}{2}}$ - und dem $2P_{\frac{1}{2}}$ -Zustand des Wasserstoffatoms mit der Theorie auf etwa $5 \cdot 10^{-9}$ der Bindungsenergie dieser Zustände genau übereinstimmt. Die inzwischen durch-

* Der hier angegebene Fehler setzt sich aus dem dreifachen mittleren quadratischen Fehler, aus systematischen Korrekturen und dem Eichfehler zusammen. Näheres s. Abschnitt IV.

¹ LAMB jr., W. E., and T. M. SANDERS jr.: Phys. Rev. **119**, 1901 (1960); dortige Fußnote 4 enthält ein vollständiges Verzeichnis der Lambshift-Messungen bei $n = 2$, Fußnote 3 zitiert die theoretischen Berechnungen.

geführten Berechnungen² der Lambshift für Hauptquantenzahlen n , die größer als $n=2$ sind, machten eine experimentelle Untersuchung bei $n=3$ wünschenswert. In der vorliegenden Arbeit wird über eine Hochfrequenzmethode zur Vermessung der Energiedifferenz zwischen den Zuständen $3S_{1/2}$ und $3P_{1/2}$ des Wasserstoffatoms berichtet³.

II. Theoretische Überlegungen

a) Beschreibung der verwendeten Versuchsmethode

Um auf Grund einer Hochfrequenz (künftig abgekürzt HF)-Methode die Energiedifferenz zwischen dem $3P_{1/2}$ - und dem $3S_{1/2}$ -Niveau des Wasserstoffatoms vermessen zu können, ist die Erzeugung eines möglichst großen Besetzungsunterschiedes beider Niveaus eine wichtige Voraussetzung. Eine Möglichkeit zur Erzeugung eines solchen Besetzungsunterschiedes besteht darin, atomaren Wasserstoff mit der Wasserstoff-Resonanzlinie-Lyman- L_{β} ($\lambda=1026\text{\AA}$) zu bestrahlen, wodurch der $3P_{1/2}$ -Zustand bevölkert wird (Fig. 1), während der $3S_{1/2}$ -Zustand praktisch unbevölkert bleibt. Der so erzielte Besetzungsunterschied beider Niveaus kann durch einen resonanten HF-Übergang bis zu einem bestimmten Grade ausgeglichen werden, und die Resonanzfrequenz läßt sich vermessen, falls man einen Detektor für diesen Prozeß besitzt.

Die entscheidenden Gesichtspunkte zur experimentellen Durchführung dieser Überlegungen sind:

1. die Erzeugung von atomarem Wasserstoff, der die Lyman- L_{β} -Linie (künftig L_{β} genannt) absorbieren soll;
2. die Herstellung einer intensiven Lichtquelle für die Emission der L_{β} -Linie;
3. der Nachweis für den gewünschten HF-Resonanzübergang.

Da atomarer Wasserstoff infolge der großen Rekombinationsverluste an den Wänden nicht in einem Gefäß aufbewahrt werden kann, kommt

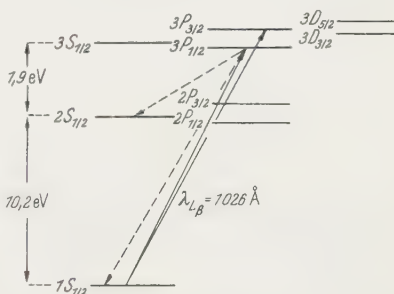


Fig. 1. Termenschema des Wasserstoff-Atomspektrums bis zur Hauptquantenzahl $n=3$. Bevölkering des $3P_{1/2}$ -Zustandes durch Einstrahlung der L_{β} -Linie und spontaner Zerfall des $3P_{3/2}$ -Zustandes. (Ordinate nicht maßstabsgerecht)

² HARRIMAN, J.M. [Phys. Rev. **101**, 594 (1956)], berechnete den Abstand zwischen dem $3S_{1/2}$ -Term und dem $3P_{1/2}$ -Term des Wasserstoffatoms zu $(314,690 \pm 0,047)$ MHz.

³ Auszugsweise vorgetragen auf dem Kolloquium für Hochfrequenzphysik in Hirschegg, Kleines Walsertal, Österreich, Oktober 1960.

als Möglichkeit zur Durchführung des Experimentes eine Atomstrahlanordnung in Frage. Wie bei allen Experimenten, bei denen HF-Übergänge in angeregten Zuständen induziert werden, läßt sich aus Intensitätsgründen der Resonanznachweis nicht durch direkte Rückwirkung auf den HF-Sender durchführen. Der Nachweis des HF-Überganges bei der unten beschriebenen Apparatur beruht auf folgenden Überlegungen: auf Grund der bekannten Übergangswahrscheinlichkeiten zerfällt ein in den $3P_{\frac{3}{2}}$ -Zustand angeregtes Wasserstoffatom nach einer mittleren Verweildauer von $5,4 \cdot 10^{-9}$ sec unter Aussendung der Balmer-Linie H_{α} in den metastabilen $2S_{\frac{1}{2}}$ -Zustand und unter Aussendung der L_{β} -Linie in den Grundzustand; das Verhältnis der Zahl der Übergänge dieser beiden

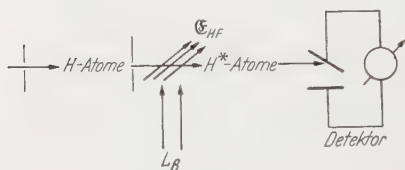


Fig. 2. Schema der Versuchsanordnung. \mathcal{E}_{HF} ist die elektrische HF-Feldstärke, die im Resonanzfall den elektrischen Dipolübergang zwischen dem $3P_{\frac{3}{2}}$ - und dem $3S_{\frac{1}{2}}$ -Zustand induzieren soll. H^* bezeichnet die Wasserstoffatome im metastabilen $2S_{\frac{1}{2}}$ -Zustand

Prozesse⁴ beträgt 1:7,5. Durch die Einstrahlung der L_{β} -Linie erzeugt man folglich metastabile Wasserstoffatome im $2S_{\frac{1}{2}}$ -Zustand, dessen Lebensdauer bei Abwesenheit elektrischer und magnetischer Felder nach der Theorie etwa 10^{-1} sec beträgt⁵. Induziert man nun gleichzeitig mit der Einstrahlung der L_{β} -Linie einen elektrischen Dipolresonanzübergang

vom $3P_{\frac{3}{2}}$ zum $3S_{\frac{1}{2}}$ -Zustand, so nimmt die Zahl der metastabilen Wasserstoffatome wieder ab, da gemäß der Übergangsregeln der $3S_{\frac{1}{2}}$ -Zustand nicht in den $2S_{\frac{1}{2}}$ -, sondern über die kurzlebigen $2P$ -Zustände in den Grundzustand zerfällt. Mit einem Detektor für die relative Zahl der metastabilen Atome kann dann der HF-Übergang von $3P_{\frac{3}{2}}$ nach $3S_{\frac{1}{2}}$ auf Grund der Abnahme der Zahl der metastabilen Atome nachgewiesen und folgende Anordnung gewählt werden (Fig. 2): Ein ausgeblendeter H-Atomstrahl wird am gleichen Ort sowohl der L_{β} -Strahlung als auch der den Dipolübergang induzierenden elektrischen HF-Feldstärke ausgesetzt, und die Änderung der Zahl der auf eine Meßplatte aufprallenden metastabilen Atome soll den Resonanzvorgang anzeigen.

b) Abschätzung der Mindestleistung einer Lampe für die L_{β} -Strahlung

Setzt man voraus, daß zum Ausgleich eines Besetzungsunterschiedes zwischen dem $3P_{\frac{3}{2}}$ - und dem $3S_{\frac{1}{2}}$ -Zustand auf Grund eines elektrischen Dipolüberganges die erforderliche HF-Feldstärke groß genug ist, so kann

⁴ Handbuch der Physik, Bd. 24, Teil I, S. 444. Berlin: Springer 1933.

⁵ SHAPIRO, J., and G. BREIT: Phys. Rev. **113**, 179 (1959). Experimentell erhalten W. L. FITE, R. T. BRACKMANN, D. G. HUMMER und R. F. STEBBINGS als untere Schranke für die Lebensdauer des $2S_{\frac{1}{2}}$ -Zustandes den Wert $2,4 \cdot 10^{-3}$ sec [Phys. Rev. **116**, 363 (1959)].

aus der Kenntnis des Absorptionskoeffizienten der L_β -Strahlung in atomarem Wasserstoff, der Intensität des Atomstrahls und der Empfindlichkeit des verwendeten Detektors abgeschätzt werden, ob das nach der obigen Methode geplante Experiment aus Intensitätsgründen durchführbar ist. Die in der Zeit Δt relative Zunahme der Zahl der durch die L_β -Absorption angeregten Atome im $3P$ -Zustand errechnet sich durch den Ausdruck⁶:

$$\frac{\Delta N_{3P}}{N_{1S}} = B_{1S \rightarrow 3P} \cdot u_0 \cdot \Delta t \quad (1)$$

(ΔN_{3P} = Zahl der angeregten Atome, N_{1S} = Zahl der Atome im Grundzustand, $B_{1S \rightarrow 3P}$ = Absorptionskoeffizient, u_0 = Energiedichte pro Frequenzintervall der anregenden Strahlung in der Umgebung der Absorptionsfrequenz $\omega_{1S \rightarrow 3P}$). Nimmt man an, daß die Atomstrahlintensität etwa 10^{16} Wasserstoffatome pro Sekunde beträgt und daß die Nachweismempfindlichkeit metastabiler Wasserstoffatome mit einem Oberflächendetektor nach LAMB und RETHERFORD⁷ bei einem Strom von etwa 10^5 metastabilen Atomen pro Sekunde liegt, so sollte die Energiedichte der anregenden L_β -Strahlung mindestens so groß sein, daß im Atomstrahl 10^5 metastabile Atome pro Sekunde erzeugt werden, d. h. es muß $\Delta N_{3P}/N_{1S}$ mindestens etwa 10^{-10} werden, wobei außerdem noch eine Zehnerpotenz berücksichtigt ist, da nur der Anteil 1:7,5 der Atome im $3P$ -Zustand in den metastabilen Zustand übergeht (s. oben). Setzt man für die mittlere Verweildauer der Atome des Atomstrahls im Anregungsraum die Zeit $\Delta t = \frac{1}{8} 10^{-5}$ sec und für die Doppler-Breite der L_β -Strahlung der verwendeten Lampe (s. Abschnitt IIIb) den Wert $\Delta \omega = 1,8 \cdot 10^{10}$ sec⁻¹ an, so ergibt sich für die geforderte Mindestenergiedichte E_0 ein Wert

$$E_0 = u_0 \cdot \Delta \omega = \frac{\Delta N_{3P}}{N_{1S}} \cdot \frac{\Delta \omega}{B_{1S \rightarrow 3P} \cdot \Delta t} = 4 \cdot 10^{-20} \text{ Wsec/cm}^3, \quad (2)$$

wobei zuvor für $B_{1S \rightarrow 3P}$ der Wert $3,4 \cdot 10^{18}$ cm g⁻¹ errechnet wurde⁶. Die zur Erreichung dieser Mindestenergiedichte erforderliche Leistung einer punktförmigen Lichtquelle für die L_β -Strahlung beträgt dann etwa

$$L = E_0 \cdot 4\pi \cdot c \cdot r^2 \approx 5 \cdot 10^{-6} \text{ W}, \quad (3)$$

wobei in Hinblick auf das durchgeführte Experiment $r = 17,5$ cm gesetzt wurde. Es ist kein Problem, mit den bekannten Gasentladungslampen Energiedichten der L_β -Strahlung im Anregungsgebiet eines Atomstrahls zu erhalten, die um einige Zehnerpotenzen höher als die geforderte Mindestenergiedichte liegen.

⁶ Handbuch der Physik, Bd. 24, Teil I, S. 743, Berlin:Springer 1933, und W. DÖRING, Einführung in die Quantenmechanik 1955.

⁷ LAMB jr., W. E., and R. C. RETHERFORD: Phys. Rev. **79**, 549 (1950).

c) Zeeman-Effekt, Hyperfeinstruktur, Linienbreite
und erforderliche HF-Feldstärke

Bei dem durchgeführten Experiment (s. Abschnitt III und IV) wurden Frequenz und HF-Feldstärke konstant gehalten, eine Zeeman-Aufspaltung der beiden Terme $3P_{3/2}$ und $3S_{1/2}$ gemacht und Resonanzübergänge zwischen den Unterniveaus durch Variieren des angelegten Magnetfeldes beobachtet. Fig. 3 zeigt die Zeeman-Aufspaltung des $3P_{3/2}$ - und des $3S_{1/2}$ -Zustandes und die untersuchten HF-Übergänge. Die Auf-

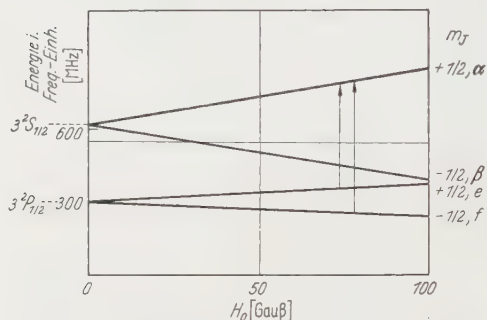


Fig. 3. Zeeman-Aufspaltung des $3S_{1/2}$ - und des $3P_{3/2}$ -Zustandes. Die Pfeile verweisen auf die untersuchten Übergänge: der (αf) -Übergang ist ein σ -Übergang, der (αe) -Übergang ein π -Übergang

spaltung des $S_{1/2}$ -Zustandes ist streng linear vom Magnetfeld abhängig, hingegen tritt beim $P_{3/2}$ -Zustand ein in der Feldstärke quadratisches Glied hinzu. Die Energien dieser vier Unterniveaus werden durch folgende Gleichungen wiedergegeben⁸:

$$E_{\alpha, \beta} = E_{S_{1/2}} \pm \frac{1}{2} g_S \mu_0 H, \quad (4)$$

$$E_{e, f} = E_{P_{3/2}} \pm \frac{1}{2} g_J \mu_0 H - \left. \begin{aligned} & - 2\mu_0^2 H^2 / 9 (E_{P_{3/2}} - E_{P_{1/2}}) \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

Gl. (5) ist als Näherung gültig, solange die normale Feinstruktur-Aufspaltung des $3P$ -Zustandes $(E_{P_{3/2}} - E_{P_{1/2}})/h = 3250,6$ MHz groß gegen $\mu_0 H$ ist, was bei den durchgeführten Messungen stets der Fall ist. Dann gelten für die Übergangsfrequenzen zwischen den Unterniveaus α und f und den Unterniveaus α und e die Beziehungen:

$$\nu_{\alpha, f} = \nu_0 + a H + b H^2, \quad (6)$$

$$\nu_{\alpha, e} = \nu_0 + \frac{a}{2} H + b H^2 \quad (7)$$

mit den Werten $a = 1,866$ MHz \cdot Gauß⁻¹ und $b = 1,35 \cdot 10^{-4}$ MHz \times Gauß⁻², wobei $\nu_0 = (E_{S_{1/2}} - E_{P_{1/2}})/h$ die im Frequenzmaß gesuchte Verschiebung des $3S_{1/2}$ -Terms gegenüber dem $3P_{3/2}$ -Term ist.

Bei der in Fig. 3 dargestellten Zeeman-Aufspaltung der Feinstruktur muß außerdem noch die Hyperfeinstruktur-Aufspaltung berücksichtigt werden. In Fig. 4 ist der Einfluß dieser Hyperfeinstruktur auf die beiden HF-Linien (αf) und (αe) dargestellt. Die dort angegebenen Zahlenwerte der Hyperfeinstruktur-Aufspaltung wurden ermittelt⁷ auf Grund ihrer Abhängigkeit proportional $1/n^3$, wobei n die Hauptquanten-

⁸ LAMB jr., W.E., and M. SKINNER: Phys. Rev. **78**, 539 (1950).

zahl bedeutet; hierbei ist vorausgesetzt, daß Kernspin I und Gesamtspin J der Elektronenhülle entkoppelt sind, was für Feldstärken gültig ist, bei denen die Zeeman-Aufspaltung des betreffenden Feinstruktur-Terms groß gegen die Nullfeld-Hyperfeinstruktur-Aufspaltung ist. Die Feldstärke, bei der die Zeeman-Aufspaltung des $3S_{1/2}$ -Terms gleich der Nullfeld-Hyperfeinstruktur-Aufspaltung ist, beträgt 21 Gauß, die entsprechende Feldstärke für den $3P_{3/2}$ -Feinstruktur-Term ist beträchtlich kleiner. Die Fig. 4 zeigt außerdem die Abstände der Linienschwerpunkte der Hyperfeinstruktur-Komponenten mit ihren natürlichen Linienbreiten. Die natürliche Linienbreite einer HF-Resonanzlinie zwischen dem $3P_{3/2}$ - und dem $3S_{1/2}$ -Zustand errechnet sich aus den bekannten Lebensdauern⁴ der beiden Zustände ($5,4 \cdot 10^{-9}$ sec und $1,6 \cdot 10^{-7}$ sec). Die Umrechnung vom Frequenz- auf das Magnetfeld-Maß geschah unter Vernachlässigung der quadratischen Korrektur mit Hilfe der Gln. (6) und (7). Da in der vorliegenden Näherung die Hyperfeinstruktur-Aufspaltungen symmetrisch zu den Feinstruktur-Komponenten liegen, liegt die Frequenz des gesuchten HF-Übergangs in der Mitte der beiden Linienschwerpunkte. Infolge der Hyperfeinstruktur-Aufspaltung vergrößert sich die Linienbreite der (αf) -Resonanzen zu etwa 35 Gauß und die der (αe) -Resonanzen zu etwa 51,5 Gauß. Existieren sonst keine weiteren Effekte der Linienverbreiterung (insbesondere keine HF-Verbreiterung und Inhomogenitätsverbreiterung durch das Magnetfeld), so sollten lediglich die (αf) -Resonanzen eine sehr kleine Einsattelung im Maximum der (αf) -Linienkontur aufweisen.

Die zur Sättigung von 50% erforderliche HF-Feldstärke für die (αf) - und (αe) -Resonanzübergänge wurde von LAMB und WILCOX⁹ zu 0,5 V/cm berechnet.

d) Signal und Untergrund

Auf Grund der speziellen Art der hier durchgeführten Methode der optischen Anregung mit einer offen an die Atomstrahlkammer

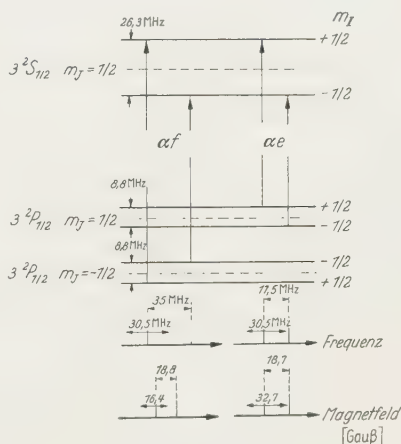


Fig. 4. Die Hyperfeinstruktur der $3^2S_{1/2}$ ($m_J = +\frac{1}{2}$)- und der $3^2P_{1/2}$ ($m_J = \pm\frac{1}{2}$)-Zustände im starken Magnetfeld und ihr Einfluß auf die (αf) - und (αe) -Resonanzen. Die erlaubten Übergänge sind durch vertikale Pfeile gekennzeichnet und die Linienschwerpunkte mit den Linienbreiten im Frequenz- und Magnetfeld-Maß angegeben

⁹ WILCOX, L. R., and W. E. LAMB jr.: Phys. Rev. **119**, 1915 (1960).

angeschlossenen Wasserstoff-Gasentladungslampe (s. Abschnitt III b) und auf Grund der Eigenschaften des verwendeten Detektors (s. Abschnitt III e) tritt neben dem gewünschten Signal für die relative Zahl der metastabilen Atome ein Untergrundsignal am Detektor auf. Dieses Untergrundsignal rührt daher, daß der benutzte Oberflächen-Detektor nicht nur auf metastabile Wasserstoffatome, sondern auch auf geladene Teilchen und UV-Quanten anspricht. Geladene Teilchen entstehen in der Ofenkammer (s. Abschnitt III a) und in der Gasentladungslampe und gelangen durch Diffusion auf die Detektor-Meßplatte. Außerdem verursachen die UV-Quanten des Lyman-Spektrums, das beim Zerfall der optisch angeregten Wasserstoffatome emittiert wird, einen Photostrom am Detektor. Der Anteil des Störuntergrundes, der auf Grund der Zerfallsprozesse der optisch angeregten Terme entsteht, soll nun im Vergleich zu dem gesuchten HF-Resonanzsignal abgeschätzt werden. Die genauen Definitionen der Begriffe Signal und Untergrund ergeben sich aus den folgenden quantitativen Überlegungen. Zunächst mögen die Differentialgleichungen für die optischen Anregungs- und Zerfallsprozesse der Terme von $n=1$ bis $n=3$ und für den Prozeß des HF-Überganges zwischen $3P_{\frac{1}{2}}$ und $3S_{\frac{1}{2}}$ aufgestellt werden:

$$\dot{N}_{3P_{\frac{1}{2}}} = \underbrace{N_{1S_{\frac{1}{2}}} B_{1S \rightarrow 3P} u_0(L_{\beta})}_{=C} - \underbrace{(A_{3P \rightarrow 2S} + A_{3P \rightarrow 1S}) N_{3P_{\frac{1}{2}}}}_{=A_{3P}} - \left. \begin{aligned} & - W(N_{3P_{\frac{1}{2}}} - N_{3S_{\frac{1}{2}}}), \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

$$\dot{N}_{3P_{\frac{3}{2}}} = 2C - A_{3P} N_{3P_{\frac{3}{2}}}, \quad (9)$$

$$\dot{N}_{3S_{\frac{1}{2}}} = W(N_{3P_{\frac{1}{2}}} - N_{3S_{\frac{1}{2}}}) - A_{3S \rightarrow 2P} N_{3S_{\frac{1}{2}}}, \quad (10)$$

$$\dot{N}_{2P_{\frac{1}{2}}} = \underbrace{N_{1S} B_{1S \rightarrow 2P} u_0(L_{\alpha})}_{=C'} - A_{2P \rightarrow 1S} N_{2P_{\frac{1}{2}}}, \quad (11)$$

$$\dot{N}_{2P_{\frac{3}{2}}} = 2C' - A_{2P \rightarrow 1S} N_{2P_{\frac{3}{2}}}. \quad (12)$$

Hierbei bedeuten N die Besetzungszahlen (\dot{N} Differentiation nach der Zeit) und A die Übergangswahrscheinlichkeiten der betreffenden Zustände, B die Absorptionskoeffizienten, $u_0(L_{\alpha})$, $u_0(L_{\beta})$ die Energiedichten pro Frequenzintervall der anregenden L_{α} - und L_{β} -Strahlung und W die HF-Übergangskonstante. Der Faktor 2 in den Gln. (9) und (12) rührt von dem doppelten statistischen Gewicht der $P_{\frac{3}{2}}$ -Zustände gegenüber den $P_{\frac{1}{2}}$ -Zuständen her. Für den stationären Fall gilt für jedes $N=0$, woraus sich die Besetzungszahlen der Terme ermitteln lassen:

$$\left. \begin{aligned} N_{3S_{\frac{1}{2}}} &= \frac{WC}{W(A_{3P} + A_{3S}) + A_{3S}A_{3P}}, & N_{3P_{\frac{1}{2}}} &= \frac{C(W + A_{3S})}{W(A_{3P} + A_{3S}) + A_{3S}A_{3P}} \\ N_{3P_{\frac{3}{2}}} &= \frac{2C}{A_{3P}}, & N_{2P_{\frac{3}{2}}} &= \frac{2C'}{A_{2P \rightarrow 1S}}, & N_{2P_{\frac{1}{2}}} &= \frac{C'}{A_{2P \rightarrow 1S}}. \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

Die Zerfallsrate R für den Zerfall des $3P_{\frac{1}{2}}$ -Zustandes in den metastabilen $2S_{\frac{1}{2}}$ -Zustand ist durch folgenden Ausdruck bestimmt:

$$R_{3P_{\frac{1}{2}} \rightarrow 2S_{\frac{1}{2}}}(W) = A_{3P \rightarrow 2S} N_{3P_{\frac{1}{2}}}. \quad (14)$$

Die Änderung dieser Zerfallsrate beim Abschalten des HF-Feldes ist dann das HF-Signal:

$$S(W) = R_{3P_{\frac{1}{2}} \rightarrow 2S_{\frac{1}{2}}}(W) - R_{3P_{\frac{1}{2}} \rightarrow 2S_{\frac{1}{2}}}(W=0). \quad (15)$$

Berücksichtigung der Gln. (13) und (14) liefert dann den Ausdruck für das Signal:

$$S(W) = \frac{C(W + A_{3S})A_{3P \rightarrow 2S}}{W(A_{3P} + A_{3S}) + A_{3S}A_{3P}} - C \frac{A_{3P \rightarrow 2S}}{A_{3P}}. \quad (16)$$

LAMB und SANDERS¹ errechneten W zu

$$W = \frac{1}{4}(A_{3P} + A_{3S})V^2/(\nu - \omega)^2 + \frac{1}{4}(A_{3P} + A_{3S})^2, \quad (17)$$

hierbei ist $\hbar V$ ein Matricelement der Wechselwirkungsenergie zwischen dem Atom und dem HF-Feld. Für den Fall 50%iger Sättigung des HF-Überganges wird $|V|^2 = A_{3S}A_{3P}$ und das Signal besitzt dann im Linienzentrum ($\nu = \omega$) den Wert

$$S_{\nu=\omega} = \frac{C(A_{3S}^2 A_{3P \rightarrow 2S} + 2A_{3S}A_{3P}A_{3P \rightarrow 2S})}{2(A_{3S}A_{3P}^2 + A_{3P}A_{3S}^2)} - C \frac{A_{3P \rightarrow 2S}}{A_{3P}}. \quad (18)$$

Setzt man in Gl. (18) die bekannten Werte für die betreffenden Übergangswahrscheinlichkeiten ein, so erhält man

$$S_{\nu=\omega} \approx 2 \cdot 10^{-2} C. \quad (19)$$

Dieser Wert für das Resonanzsignal ist zu vergleichen mit dem Untergrundsignal U , das bei verschwindender HF-Feldstärke durch UV-Quanten und die metastabilen Atome am Detektor verursacht wird. Die Zahl Z der in der Sekunde entstehenden UV-Quanten und metastabilen Atome ist durch die Summe der Zerfallsraten aller angeregten Terme bestimmt:

$$Z = N_{2P_{\frac{1}{2}}}A_{2P \rightarrow 1S} + N_{2P_{\frac{3}{2}}}A_{2P \rightarrow 1S} + N_{3P_{\frac{1}{2}}}A_{3P \rightarrow 1S} + N_{3P_{\frac{3}{2}}}A_{3P \rightarrow 1S} + \left. \begin{aligned} &+ N_{3P_{\frac{1}{2}}}A_{3P \rightarrow 2S} + N_{3P_{\frac{3}{2}}}A_{3P \rightarrow 2S} \end{aligned} \right\} \quad (20)$$

Die ersten vier Glieder von Gl. (20) geben die gesamte Zahl (pro Sekunde) der emittierten L_{α} - und L_{β} -Quanten wieder; nur die beiden letzten Glieder berücksichtigen die Zahl der metastabilen Atome. Mit den Gln. (13) und $W=0$ folgt:

$$Z = 3 \cdot C' + 3 \cdot C + 0,35 \cdot C. \quad (21)$$

$3C'$ gibt die Zahl der L_{α} -, $3C$ die Zahl der L_{β} -Quanten und $0,35C$ die Zahl der metastabilen Atome an (pro Sekunde). Um nun zum Untergrundsignal U zu gelangen, müssen noch der Raumwinkelfaktor γ bei der Emission der UV-Quanten und die Elektronenausbeuten der UV-Quanten (η_{UV}) und der metastabilen Atome (η_{2S}) an der Detektorplatte berücksichtigt werden:

$$U = 3 \cdot \eta_{UV} \cdot \gamma (C' + C) + 0,35 \eta_{2S} C. \quad (22)$$

η_{2S} und η_{UV} sind nicht genau bekannt, liegen aber beide in der Größenordnung von einigen Prozenten, γ betrug in dem durchgeführten Experiment etwa 10^{-3} ; C' und C , die Absorptionsraten der L_{α} - und L_{β} -Strahlung, können nur dann relativ zueinander bestimmt werden, wenn man die Anregungsbedingungen der verwendeten Gasentladungslampe kennt. Unter der vereinfachten Annahme der Gleichbesetzung der angeregten Zustände der Wasserstoffatome in der Gasentladungslampe und mit den bekannten Werten für die betreffenden Übergangswahrscheinlichkeiten und Absorptionskoeffizienten, die als Faktoren in C und C' [s. Gl. (8) und (11), u_0 ist proportional der Übergangswahrscheinlichkeit] enthalten sind, errechnet sich das Verhältnis C'/C zu 21. Dann folgt für U :

$$U = 6,6 \eta_{UV} 10^{-2} C + 0,35 \cdot \eta_{2S} C. \quad (23)$$

Berücksichtigt man in Gl. (19) noch die Elektronenausbeute η_{2S} und setzt $\eta_{2S} \approx \eta_{UV}$, so erhält man für das Signal-Untergrundverhältnis den Wert $S/U \approx 0,05$.

Dieses günstige Verhältnis des Signalstroms zum Untergrundstrom wird durch den Anteil des Untergrundes aus Lampe und Ofen vermindert, worüber allerdings keine quantitativen Abschätzungen gemacht werden können.

III. Beschreibung der Atomstrahlresonanz-Apparatur

Die verwendete Atomstrahlresonanz-Apparatur (Fig. 5) war in drei Kammern unterteilt:

1. Ofenkammer,
2. Anregungskammer,
3. Detektorkammer.

In der Ofenkammer befand sich ein Wolfram-Ofen zur thermischen Dissoziation des molekularen Wasserstoffs. Durch eine Blende (Durchmesser ≈ 1 mm) trat der Wasserstoff als Atomstrahl in die Anregungskammer, in der die Anregung durch die L_{β} -Strahlung geschah und der HF-Übergang induziert wurde. Von dort verlief der Atomstrahl durch eine 50 mm^2 große Blendenöffnung in die Detektorkammer und prallte auf die Meßplatte des Detektors.

Zur Vermeidung von Stößen der Atome untereinander mußte die freie Weglänge mindestens so groß sein, wie die Apparatur lang war. Jede Kammer besaß daher eine Diffusionspumpe mit einer Saugleistung von 100 Liter pro Sekunde.

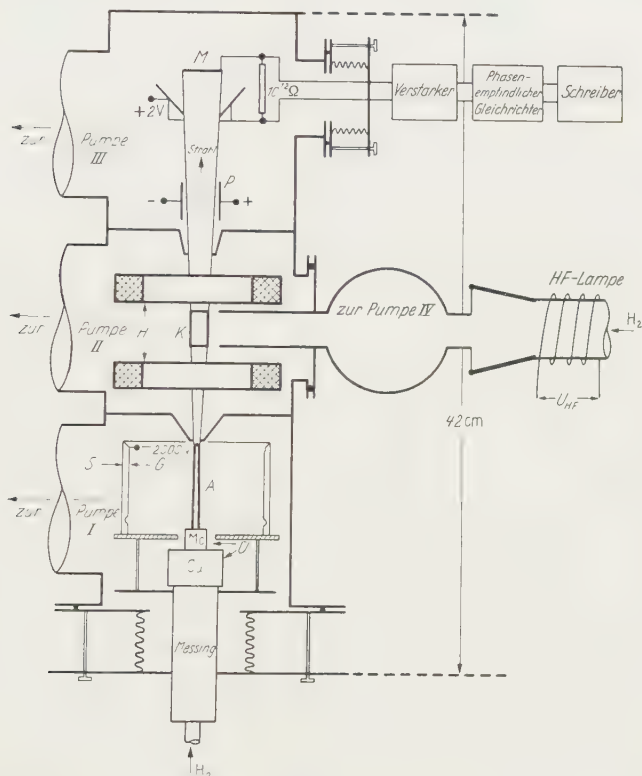


Fig. 5. Schematischer Plan der Atomstrahlresonanz-Apparatur. Unterteilung der Apparatur in drei Kammern: 1. Ofenkammer mit Pumpe I; 2. Anregungskammer mit Pumpe II; Detektorkammer mit Pumpe III. Helmholtz-Spulenpaar H und HF-Kondensator K in der Anordnung zur Beobachtung von σ -HF-Übergängen. A Wolframrohr des Wasserstoff-Atomstrahlrofens (Anode); G Glühkathode des Atomstrahlrofens; S Strahlenschutzzyylinder; U Übergangsträger aus Molybdän und Kupfer; P Plattenkondensator zur Erzeugung eines elektrostatischen Feldes; M Meßplatte des Detektors für metastabile Wasserstoffatome

a) Wasserstoffatomstrahlrofens

Die Erzeugung atomaren Wasserstoffs geschah durch thermische Dissoziation der Moleküle in einem Wolfram-Rohr, das durch Beschuß mit 2 keV-Elektronen bis auf 2800 °K aufgeheizt werden konnte¹⁰. Der zu dieser Temperatur gehörende Dissoziationsgrad liegt über 80%⁷. Aus Gründen der Wärmeleitung und der Schmelztemperatur der verwendeten

¹⁰ TITTEL, K.: Diplomarbeit, Phys. Institut der Universität Tübingen, 1958. Herrn Dr. J.W. HEBERLE danken wir für die Ratschläge zum Bau des Wasserstoffatomstrahlrofens.

Materialien wurde das Wolfram-Rohr durch eine Paßhalterung von Molybdän, das Molybdän-Stück von Kupfer und das Kupfer von Messing getragen. Im Innern dieser Trägermetalle wurde dem Wolfram-Rohr der Wasserstoff zugeführt. Um das Wolfram-Rohr und um die auf Hochspannung liegenden aufgeheizten Wolfram-Bänder, die die Elektronen zum Beschuß des Wolfram-Rohres lieferten, befand sich noch ein Zylinder aus Molybdän zur Verminderung der Wärmeabstrahlung.

b) Lampe zur Erzeugung der L_{β} -Strahlung

Das Hauptproblem bei der Anregung des Atomstrahls mit der L_{β} -Linie bestand zunächst in der Suche nach einem Material, das für optische Strahlung bei der betreffenden Wellenlänge ($\lambda = 1026 \text{ \AA}$) der L_{β} -Linie hinreichend durchlässig ist. Demgegenüber trat zunächst die Frage der Art der Lampe zurück. Aus der Literatur war bekannt, daß LiF am weitesten im Vakuum-UV-Bereich durchlässig sein sollte, allerdings nur bis etwa 1100 \AA^* . Angesichts dessen wurde die Möglichkeit ins Auge gefaßt, eine Wasserstofflampe ohne Zwischenfenster direkt an die Anregungskammer anzuschließen. Dabei trat jedoch das Problem auf, daß in der Anregungskammer ein weitaus niedrigerer Druck sein muß (etwa 10^{-5} Torr) als in der Gasentladungslampe. In diesem Zusammenhang erschienen Hochfrequenzentladungslampen gegenüber den üblichen Niederdruck-Gasentladungslampen von größerem Vorteil, da die HF-Lampen bei niedrigerem Druck (etwa zwischen 10^{-1} und 10^{-3} Torr) als die Niederdruck-Lampen (etwa zwischen 1 und 10^{-1} Torr) brennen. Der unmittelbare Anschluß einer solchen HF-Lampe mit einer Öffnung von 1 mm^2 an die Wandung der Anregungskammer führte jedoch noch nicht zur einwandfreien Beobachtung der gesuchten HF-Resonanzübergänge; es erwies sich aus Intensitätsgründen als notwendig, die Öffnung der Lampe beträchtlich zu vergrößern (etwa 1 cm^2) und an einem an beiden Enden offenen Kanal ($6 \times 18 \times 120 \text{ mm}^3$), der Lampe und Anregungskammer miteinander verband, eine vierte 100 Liter-Diffusionspumpe anzuschließen. Hiermit gelang es, den Druck in der Anregungskammer genügend klein zu halten und andererseits der HF-Lampe soviel Wasserstoff zuzuführen, daß sie intensiv genug die atomare Linienstrahlung emittierte.

* Es bestand die Hoffnung, daß besonders reines LiF in dünner Schicht möglicherweise bis 1026 \AA durchlässig sein könnte. Eigene vakuum-spektroskopische Untersuchungen zeigten jedoch, daß das von der Firma Leitz (Wetzlar) uns freundlicherweise zur Verfügung stellte und besonders reine LiF nur bis etwa 1075 \AA durchlässig ist. Unterhalb dieser Wellenlänge wird infolge der steilen Absorptionskante selbst von dünnen LiF-Schichten (einige μ) für die praktischen Erfordernisse als Lampenfenster nichts mehr hindurchgelassen. Auch verschiedene handelsübliche Kunststoff-Folien erwiesen sich in dem gewünschten Spektralbereich als völlig undurchlässig.

Die zylinderförmige Wasserstofflampe aus Hartglas befand sich in der Schwingspule eines 500 W-HF-Senders; die verwendete Gegentaktschaltung des Senders besaß zwei Telefunken-Röhren vom Typ RS 683. Die Senderfrequenz betrug etwa 50 MHz.

c) Zufuhr der HF-Energie für den $3P_{\frac{3}{2}} \rightarrow 3S_{\frac{3}{2}}$ -Übergang

Dort, wo das Lichtstrahlenbündel der HF-Lampe das Atomstrahlbündel kreuzte, befand sich das zu einem Plattenkondensator geformte Ende eines Koaxial-Leiters, der die HF-Energie für den elektrischen Dipolübergang von $3P_{\frac{3}{2}}$ nach $3S_{\frac{3}{2}}$ zuführte. Der Abstand der Platten betrug 5 mm, die Plattenoberfläche etwa 1 cm^2 . Die Vakuum-Durchführung des Koaxial-Leiters geschah mit Hilfe einer hochvakuumdichten Glasisolierung zwischen Innen- und Außenleiter. Als Sender diente der Rohde-Schwarz UHF-Leistungsmeßsender Typ SLRD (Frequenzbereich 275 bis 2750 MHz).

d) Magnetfeld

Im Inneren der Anregungskammer befand sich ein Helmholtz-Spulenpaar mit einem Durchmesser von 7 cm und einer Windungszahl von etwa 5000 pro Spule. Fig. 5 zeigt das Helmholtz-Spulenpaar in der Anordnung zur Beobachtung von σ -HF-Übergängen; außerdem konnte zur Beobachtung von π -Übergängen das Spulenpaar in der Weise angeordnet werden, daß seine Achse senkrecht zur Zeichenebene der Fig. 5 und parallel zu den Vektoren des elektrischen HF-Feldes im Kondensator gerichtet war. Bei einem maximalen Spulenstrom von etwa 65 mA konnte in der Mitte der Spule eine Feldstärke von 140 Gauß erreicht werden. Ein Teil der Stromwärme wurde durch metallischen Kontakt zwischen Apparaturgehäuse und Spulenträger abgeführt. Im Abstand 5 mm vom Zentrum des Spulenpaares änderte sich in Achsenrichtung die Feldstärke um etwa 2%, was mit einem kleinen Hall-Generator festgestellt wurde. Diese Inhomogenität konnte bei der zu erwartenden beträchtlichen Linienbreite und der ersten Vermessung der gesuchten HF-Resonanzen ohne weiteres in Kauf genommen werden. Die Eichung des Magnetfeldes geschah mit der paramagnetischen Elektronenresonanz von DPPH. Zu diesem Zweck wurden die Platten des Kondensators der in Abschnitt IIIc beschriebenen Koaxial-Leitung durch ein Metallblech kurzgeschlossen und die DPPH-Probe gleichmäßig verteilt zwischen den Platten angebracht. Bei einer Linienbreite der DPPH-Resonanz von etwa 3 bis 4 Gauß und der Güteklasse 0,5 des Strom-Meßinstrumentes der Helmholtz-Spulen lag die Genauigkeit dieser Eichung für 100 Gauß bei etwa $\pm 1,0$ Gauß. Das Magnetfeld konnte mit einem Modulationshub von einigen Gauß und einer Frequenz von 20 Hz moduliert und in Zeiten von 30 sec bis etwa 5 min von 0 bis 140 Gauß elektronisch durchgeschoben werden.

e) Detektorkammer

Unmittelbar hinter der zweiten Blende befand sich in der Detektorkammer ein Plattenkondensator, durch dessen Innenraum der Atomstrahl verlief, bevor er auf die Meßplatte des Oberflächen-Detektors prallte. Elektrostatische Felder des Plattenkondensators dienten dazu, den Zerfall der metastabilen Atome herbeizuführen (Abschnitt IV). Der Detektor für die metastabilen Atome entsprach völlig dem von LAMB und RETHERFORD verwendeten⁷. Das modulierte Resonanzsignal wurde von dem Elektrometeröhren-Verstärker über Vorverstärker und einen phasenempfindlichen Gleichrichter auf einen Schreiber gegeben.

IV. Messungen und Ergebnisse

Anfängliche Schwierigkeiten bei der Registrierung der HF-Resonanzlinien traten durch den Umstand auf, daß sich der Untergrund, der von geladenen Teilchen aus der Lampe und dem Ofen herrührte, beim

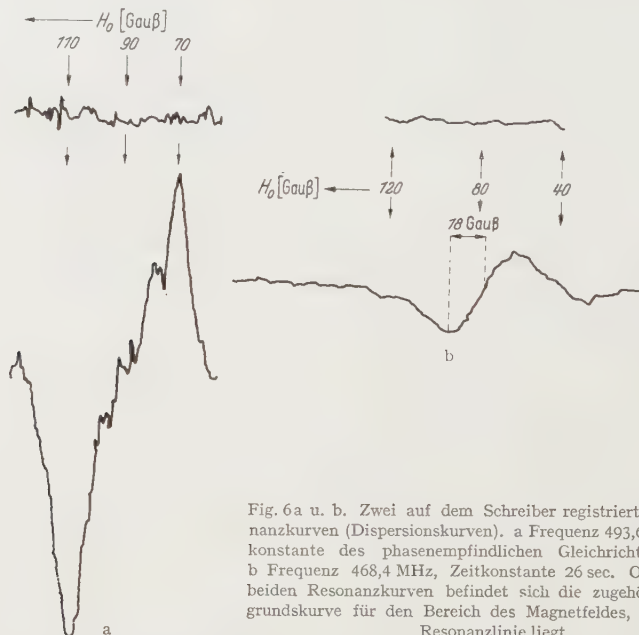


Fig. 6a u. b. Zwei auf dem Schreiber registrierte (αf)-Resonanzkurven (Dispersionskurven). a Frequenz 493,6 MHz, Zeitkonstante des phasenempfindlichen Gleichrichters 0,8 sec. b Frequenz 468,4 MHz, Zeitkonstante 26 sec. Oberhalb der beiden Resonanzkurven befindet sich die zugehörige Untergrundskurve für den Bereich des Magnetfeldes, in dem die Resonanzlinie liegt

Durchschieben des Magnetfeldes änderte, wodurch das Linienprofil verzerrt wurde. Das war immer dann der Fall, wenn das registrierte Resonanzsignal mangels optimaler Versuchsbedingungen so schwach war, daß es bei höchster elektronischer Verstärkung registriert werden mußte. Bei optimalen Versuchsbedingungen hingegen war der Unter-

grund nahezu konstant, und die Linie erschien unverzerrt beim Durchschieben des Magnetfeldes (s. Fig. 6).

Bei konstanter HF-Energiedichte für den Resonanzübergang wurden die optimalen Versuchsbedingungen durch die Atomstrahlintensität und die Zustandsbedingungen der Gasentladungslampe bestimmt. Was den Atomstrahllofen betrifft, so konnte bei Gaseinlaß der Druck in der Ofenkammer bis zu etwa $6 \cdot 10^{-4}$ Torr ansteigen, ohne daß elektrische Überschlüsse zwischen dem Wolframrohr und den auf Hochspannung liegenden Heizbändern auftraten. Im allgemeinen wurde bei einer Ofentemperatur von etwa 2600 °K gearbeitet, und das Resonanzsignal nahm mit der Atomstrahlintensität zu. Komplizierter waren die Verhältnisse bei der Lampe. Fig. 8 zeigt die Größe des Resonanzsignals als Funktion des Druckes in der Anregungskammer, wobei die Versorgungsspannungen der Senderöhren der Lampe, die Atomstrahlintensität und die HF-Feldstärke nicht geändert wurden. Qualitativ läßt sich diese Figur folgendermaßen verstehen: Mit ansteigendem Druck in der Lampe und der Anregungskammer nahm die Intensität der L_β -Strahlung und folglich zunächst auch der Größe des Resonanzsignals zu. Nach Durchlaufen eines

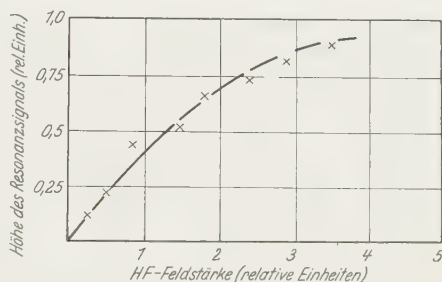


Fig. 7. Experimentelle Vermessung der Sättigungskurve einer (αf)-Resonanz: bei festgehaltenem Magnetfeld wurde die Höhe eines Resonanzsignals als Funktion der im Anregungsraum ausgekoppelten HF-Intensität bestimmt

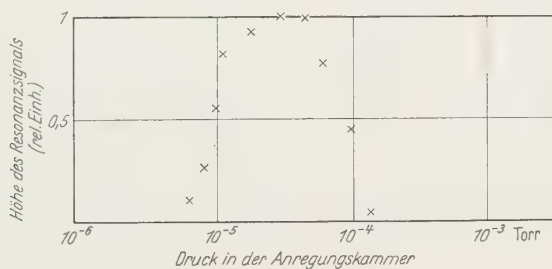


Fig. 8. Höhe eines (αf)-Resonanzsignals (relative Einheiten) am phasenempfindlichen Gleichrichter als Funktion des Druckes in der Anregungskammer. Die übrigen Parameter (Atomstrahlintensität, HF-Feldstärke, Versorgungsspannungen der HF-Lampe), die das Resonanzsignal beeinflussen, wurden nicht geändert

Maximums nahm die Größe des Resonanzsignals beträchtlich ab, obwohl die Lampenintensität anstieg. Diese Verminderung der Größe des Resonanzsignals läßt sich damit erklären, daß die freie Weglänge bei den relativ hohen Drucken nicht mehr groß genug war, die metastabilen Atome Stöße mit den Restgasteilchen machten und folglich den Detektor

nicht mehr erreichten. Dieses Verhalten des Resonanzsignals konnte qualitativ immer beobachtet werden, und die Vermessungen der Resonanzen wurden im Bereich des Maximums der Druckabhängigkeit durchgeführt. Außer der Beeinflussung des Resonanzsignals durch Druckänderung in der Anregungskammer konnte das Resonanzsignal durch elektrostatische Felder in seiner Größe vermindert werden, da der metastabile 2S-Zustand sich auf Grund des Stark-Effektes mit dem 2P-Zustand vermischt und unter Aussendung der L_{α} -Linie in den Grundzustand übergeht⁷. Die Auflösung der Hyperfeinstruktur der (αf)-Resonanz gelang nicht, da sich die beiden Hyperfeinstruktur-Linienkomponenten (s. Fig. 4) infolge ihrer großen natürlichen Linienbreite und der Inhomogenitätsverbreiterung durch das Magnetfeld beträchtlich überlappten.

Die Tabelle enthält die Auswertung der gemessenen Linien. Die dort angegebenen Werte für die magnetische Feldstärke markieren den Null-

durchgang der jeweilig registrierten Dispersionskurve. Bei Registrierung von Resonanzlinien in Form einer Dispersionskurve zeigt sich eine asymmetrische Gestalt der Linie besonders deutlich, was auch in einigen Fällen der (αf)-Resonanzen (s. z. B. Fig. 6a) beobachtet werden konnte. Ein systematischer Gang dieser Asymmetrien konnte jedoch nicht mit Sicherheit festgestellt werden. Zur statistischen Auswertung wurden nur die (αf)-Resonanzen verwendet, da deren in Gauß gemessene Linienbreite gegenüber den (αe)-Resonanzen beträchtlich kleiner ist (s. Fig. 4). Außerdem erfahren die (αe)-Resonanzen gegenüber den (αf)-Resonanzen eine zusätzliche Stark-Effekt-Verschiebung infolge der Bewegung des Atomstrahls senkrecht zum Magnetfeld⁷. Zur Fehlerangabe des Mittelwertes der Meßergebnisse (s. Tabelle) sind folgende Anteile zu addieren:

Tabelle

$\nu_{\alpha, f}$ MHz	H_0 [Gauß]	ν_0 [MHz]
468,4	79,0	320,1
468,4	82,3	313,8
468,4	82,7	313,1
468,4	85,8	307,4
430,2	62,4	315,9
493,6	92,7	319,5
493,6	94,4	316,3
493,6	98,2	309,3
476,5	87,7	312,1
476,5	89,2	309,2
476,5	88,7	310,2
476,5	83,0	320,9
462,4	81,0	308,3
462,4	80,5	311,2
462,4	78,5	313,1
462,4	76,0	317,7

Mittelwert $\nu_0 = 313,6$ MHz,
mittlerer quadratischer Fehler
 $\pm 1,1$ MHz.

$\nu_{\alpha, e}$ MHz	H_0 [Gauß]	ν_0 [MHz]
360	50	312,9
386	77	314,4

1. 3,3 MHz, der dreifache Wert des mittleren quadratischen Fehlers;
2. 1,9 MHz, der auf Frequenzeinheiten umgerechnete Eichfehler des statischen Magnetfeldes;
3. 0,5 MHz, als obere Grenze der Summe aller übrigen Fehlerquellen und Korrekturen (Stark-Effekt, Hyperfeinstruktur des Wasserstoffs, Paschen-Back-Effekt u.a.), die in den Arbeiten

von LAMB, SANDERS und WILCOX^{1,9} ausführlich diskutiert sind. Das nach dem gegenwärtigen Stand der Untersuchungen erhaltene Resultat der Vermessung der Lamb-Verschiebung des $3S_{\frac{1}{2}}$ -Zustandes gegenüber dem $3P_{\frac{3}{2}}$ -Zustand des Wasserstoffatoms beträgt folglich mit Angabe des Fehlers:

$$\delta_H(3^2S_{\frac{1}{2}} - 3^2P_{\frac{3}{2}})_{\text{exp}} = (313,6 \pm 5,7) \text{ MHz.}$$

Dieser Wert ist zu vergleichen mit dem von HARRIMAN theoretisch ermittelten² $\delta_H(3^2S_{\frac{1}{2}} - 3^2P_{\frac{3}{2}})_{\text{theor}} = (314,690 \pm 0,047) \text{ MHz}$ und außerdem mit der von LAMB und WILCOX⁹ experimentell bestimmten Verschiebung des $3S_{\frac{1}{2}}$ -Terms gegenüber dem $3P_{\frac{3}{2}}$ -Term für das Deuterium-Atom $\delta_D(3^2S_{\frac{1}{2}} - 3^2P_{\frac{3}{2}})_{\text{exp}} = (315,30 \pm 0,80) \text{ MHz}$, die theoretisch zu $\delta_D(3^2S_{\frac{1}{2}} - 3^2P_{\frac{3}{2}})_{\text{theor}} = 315,34 \text{ MHz}$ errechnet wurde⁹.

Zur Erhöhung der Meßgenauigkeit des vorliegenden Resultates und zur Suche der Feinstruktur-Übergänge zwischen den Zuständen $3P$ und $3D$ und zwischen den Zuständen bei $n=4$ sind verschiedene apparative Verbesserungen geplant: 1. Steigerung der Magnetfeldhomogenität und genauere Feldeichung; 2. Bau eines Detektors, der nur auf die metastabilen Atome und nicht auf den Störuntergrund aus Lampe und Wasserstoffofen anspricht; 3. weitere Suche nach einem Fenster für die L_{β} -Linie; 4. Bau eines HF-Senders im Bereich um 3000 MHz zur Vermessung von Übergängen zwischen $3P_{\frac{3}{2}}$ - und $3S_{\frac{1}{2}}$ -Unterniveaus, deren Energien nur linear vom Magnetfeld abhängen.

In Hinblick auf die Steigerung der Meßgenauigkeit kann bei der hier beschriebenen Methode als besonders günstig das Fehlen statischer elektrischer Felder am Ort des HF-Überganges angesehen werden.

Herrn Professor Dr. H. KRÜGER danke ich sehr herzlich für die Anregung und Förderung dieser Arbeit. Für die Förderung zu Beginn der Arbeit bin ich Herrn Professor Dr. H. KOPFERMANN zu Dank verpflichtet. Den Herren Dipl.-Phys. J. KAUFMANN und Dipl.-Phys. K. TITTEL danke ich für ihre unermüdliche Bereitwilligkeit zu klärenden Diskussionen. Dank gebührt ebenfalls der Firma Leitz, Wetzlar, die uns LiF-Platten zur Verfügung stellte. Ganz besonders sei auch der Firma Osram für ihre zahlreichen Sachspenden in Form von Wolfram- und Molybdän-Kleinteilen gedankt. Die Deutsche Forschungsgemeinschaft und das Bundesministerium für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft stellten die für die Durchführung der Untersuchungen erforderlichen Mittel zur Verfügung.

Aus dem Physikalischen Institut der Technischen Hochschule Aachen

Hydromagnetische Strömung im kreiszylindrischen Rohr

Von

J. UHLENBUSCH und E. FISCHER

Mit 5 Figuren im Text

(Eingegangen am 15. Mai 1961)

In dieser Arbeit wird eine exakte Lösung der hydromagnetischen Grundgleichungen für die Strömung im kreiszylindrischen Rohr unter Einwirkung eines transversalen homogenen Magnetfeldes angegeben. Für ein schwaches äußeres Magnetfeld werden aus der exakten Lösung einfache Näherungen für die Verteilung der Geschwindigkeit, des induzierten Magnetfeldes, des Stromes, der Spannung und der Durchflußmenge abgeleitet. Außerdem gelingt die Berechnung der Geschwindigkeit und des Magnetfeldes in der Achse.

1. Einleitung

Die magnetohydrodynamische Rohrströmung unter dem Einfluß eines zeitlich konstanten transversalen Magnetfeldes ist ausführlich von SHERCLIFF¹⁻³ untersucht worden. SHERCLIFF behandelt Rohre von rechteckigem und kreiszylindrischem Querschnitt. Für das rechteckige Rohrprofil wird die exakte Lösung angegeben. Die Berechnung des Strömungsverhaltens bei kreiszylindrischem Querschnitt erfolgt für kleine äußere Magnetfelder nach einem Iterationsverfahren. Bei stärkeren äußeren Magnetfeldern zeigt die Strömung Grenzschichtcharakter, und die daraus folgenden Vereinfachungen der Grundgleichung ermöglichen eine angenäherte Bestimmung aller interessierenden Größen. In einer neueren Arbeit greift K. P. CHOPRA⁴ das Problem der kreiszylindrischen Strömung wieder auf. Die Annahme einer Radialsymmetrie für das Geschwindigkeitsprofil vereinfacht nach unserer Meinung die Verhältnisse zu sehr, so daß den von ihm angegebenen Lösungen nur qualitativer Charakter zukommt. Eine exakte Behandlung des geschilderten Strömungsverlaufs steht unseres Wissens noch aus und soll im folgenden dargestellt werden.

¹ SHERCLIFF, J. A.: Proc. Cambridge Phil. Soc. **49**, Pt 1, 136 (1953).

² SHERCLIFF, J. A.: J. Fluid Mech. **1**, 644 (1956).

³ SHERCLIFF, J. A.: A. E. R. E. Report X/R 1052.

⁴ CHOPRA, K. P.: Z. Physik **162**, 46 (1961).

2. Die Grundgleichungen

Eine leitende, zähe, inkompressible Flüssigkeit strömt stationär in einem Rohr von beliebigem Querschnitt in z -Richtung mit der Geschwindigkeit v_z . Senkrecht zur Strömung, etwa in x -Richtung, wird ein homogenes, zeitlich konstantes Magnetfeld H_0 angelegt (s. Fig. 1). Durch die Bewegung der Flüssigkeit gegenüber dem Magnetfeld wird in der xy -Ebene ein Strom der Dichte $\mathbf{j}(x, y)$ induziert mit den Komponenten j_x und j_y . Das Zusammenwirken der Stromkomponente j_y mit dem äußeren Magnetfeld H_0 ruft in z -Richtung die Kraft $-\mu H_0 j_y$ hervor, wobei μ die Permeabilität der Flüssigkeit bedeutet.

Durch die Zähigkeit des Mediums tritt zusätzlich eine Kraft $\eta \Delta v_z$ in z -Richtung auf. η bedeutet die Zähigkeit der Flüssigkeit. Diesen beiden Kräften hält der konstante Druckgradient das Gleichgewicht. Es gilt also die Bilanz

$$-\mu H_0 j_y + \eta \Delta v_z = \frac{\partial p}{\partial z}. \quad (1)$$

Das Ohmsche Gesetz lautet für bewegte Medien:

$$\mathbf{j} = \sigma (\mathfrak{E} + \mu \mathbf{v} \times \mathfrak{H}). \quad (2)$$

Hierin bedeutet σ die elektrische Leitfähigkeit (sie sei unabhängig von H_0) und \mathfrak{E} die induzierte elektrische Feldstärke. Weiter gilt nach MAXWELL für stationäre Vorgänge

$$\mathbf{j} = \text{rot } \mathfrak{H} \quad (3)$$

und

$$\text{rot } \mathfrak{E} = 0. \quad (4)$$

Aus (2), (3) und (4) folgt nach einfachen Rechenschritten

$$\Delta H_z + \sigma \mu H_0 \frac{\partial v_z}{\partial x} = 0. \quad (5)$$

Mit der Beziehung (3) kann man (1) die Gestalt

$$\Delta v_z + \frac{\mu H_0}{\eta} \frac{\partial H_z}{\partial x} - \frac{\partial p}{\partial z} = 0 \quad (6)$$

geben. Es ist sinnvoll, die Gleichungen dimensionslos zu machen. Dazu führt man eine charakteristische Länge a (etwa den Rohrradius) und eine Geschwindigkeit v_0 (mittlere Strömungsgeschwindigkeit) ein. Mit den Substitutionen

$$X = \frac{x}{a}, \quad Y = \frac{y}{a}, \quad Z = \frac{z}{a} \quad (7)$$

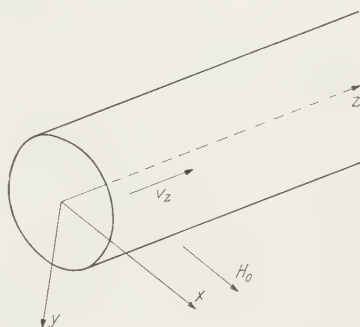


Fig. 1. Anordnung des Magnetfeldes

und der Hartmann-Zahl

$$M = \mu H_0 a \sqrt{\frac{\sigma}{\eta}} \quad (8)$$

sowie

$$P = -\frac{a^2}{\eta v_0} \frac{\partial p}{\partial z}, \quad H_z = v_0 (\sigma \eta)^{\frac{1}{2}} h, \quad v_z = v_0 \cdot u \quad (9)$$

lauten die Gln. (5) und (6)

$$\Delta h + M \frac{\partial u}{\partial X} = 0, \quad (5')$$

$$\Delta u + M \frac{\partial h}{\partial X} + P = 0. \quad (6')$$

Der Operator Δ bedeutet jetzt $\frac{\partial^2}{\partial X^2} + \frac{\partial^2}{\partial Y^2}$.

Setzt man

$$h = \frac{1}{2} \left(e^{-\frac{M}{2} X} f(X, Y) + e^{\frac{M}{2} X} g(X, Y) \right) - \frac{P}{M} X \quad (10)$$

und

$$u = \frac{1}{2} \left(e^{-\frac{M}{2} X} f(X, Y) - e^{\frac{M}{2} X} g(X, Y) \right), \quad (11)$$

so werden die Gln. (5') und (6') erfüllt, wenn f und g den Gleichungen

$$\left. \begin{aligned} \Delta f - \frac{M^2}{4} f &= 0 \\ \Delta g - \frac{M^2}{4} g &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

genügen. Diese Differentialgleichungen, die mit der Helmholtz-Gleichung verwandt sind, lassen sich wesentlich einfacher behandeln als das System (5'), (6'), da sie gegen Koordinatentransformationen invariant sind. Das mathematische Problem läuft darauf hinaus, in dem durch den Rohrquerschnitt vorgegebenen Gebiet Lösungen von (12) zu finden, die gewissen Randbedingungen genügen.

3. Die Randbedingungen

Eine zähe Flüssigkeit haftet am Rande, d.h.

$$U_{\text{Rand}} = 0. \quad (13)$$

Schwieriger ist die Randbedingung für das Magnetfeld zu formulieren. Nach SHERCLIFF lautet sie für das kreiszylindrische Rohr

$$h_{\text{Rand}} = \frac{w \sigma_0}{a \sigma} \left(\frac{\partial h}{\partial n} \right)_{\text{Rand}}. \quad (14)$$

In dieser Formel ist w die Wanddicke, a der Rohrradius, σ_0 die Leitfähigkeit der Wand, σ die Leitfähigkeit der Flüssigkeit und n die Normalenrichtung. Die Randbedingung ist vom gemischten Typ. Für eine nichtleitende Rohrwand vereinfacht sich diese Bedingung. Man erhält

$$h_{\text{Rand}} = 0. \quad (15)$$

Mit (13) und (15) kann man auch die Randbedingungen für $f(X, Y)$ und $g(X, Y)$ angeben. Für den kreisförmigen Rohrquerschnitt ist die Einführung von Polarkoordinaten zweckmäßig.

$$X = \varrho \cos \varphi, \quad Y = \varrho \sin \varphi. \quad (16)$$

Die Rohrwand wird dann durch $\varrho = 1$ dargestellt, und man erhält aus (10) und (11)

$$f(1, \varphi) = \sum_M e^{\frac{M}{2} \cos \varphi} \cdot \cos \varphi = \sum_M \sum_{n=-\infty}^{\infty} I'_n \left(\frac{M}{2} \right) e^{in\varphi}, \quad (17)$$

$$g(1, \varphi) = \sum_M e^{-\frac{M}{2} \cos \varphi} \cdot \cos \varphi = \sum_M \sum_{n=-\infty}^{\infty} I'_n \left(\frac{M}{2} \right) (-1)^{n+1} e^{in\varphi}. \quad (18)$$

I_n ist die modifizierte Bessel-Funktion n -ter Ordnung.

4. Exakte Lösung der Grundgleichung

Die Gln. (12) lauten in zylindrischen Polarkoordinaten

$$\frac{\partial^2(f, g)}{\partial \varrho^2} + \frac{1}{\varrho} \frac{\partial(f, g)}{\partial \varrho} + \frac{1}{\varrho^2} \frac{\partial^2(f, g)}{\partial \varphi^2} - \frac{M^2}{4} (f, g) = 0. \quad (19)$$

Eine spezielle in der Achse reguläre Lösung ist

$$f_n, g_n = (A_n, B_n) I_n \left(\frac{M}{2} \varrho \right) e^{in\varphi}, \quad (20)$$

n ist ganzzahlig.

Für die allgemeine Lösung machen wir den Ansatz

$$f(\varrho, \varphi) = \sum_n A_n I_n \left(\frac{M}{2} \varrho \right) e^{in\varphi}, \quad (21)$$

$$g(\varrho, \varphi) = \sum_n B_n I_n \left(\frac{M}{2} \varrho \right) e^{in\varphi}. \quad (22)$$

Ein Vergleich mit (17) und (18) zeigt

$$f(\varrho, \varphi) = \frac{P}{M} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{I'_n\left(\frac{M}{2}\right)}{I_n\left(\frac{M}{2}\right)} I_n\left(\frac{M}{2}\varrho\right) e^{in\varphi}, \quad (23)$$

$$g(\varrho, \varphi) = \frac{P}{M} \sum_{n=-\infty}^{\infty} (-1)^{n+1} \frac{I'_n\left(\frac{M}{2}\right)}{I_n\left(\frac{M}{2}\right)} I_n\left(\frac{M}{2}\varrho\right) e^{in\varphi}, \quad (24)$$

und schließlich folgt mit (10) und (11)

$$\left. \begin{aligned} h(\varrho, \varphi) &= \frac{P}{2M} \left[\sum_{n=-\infty}^{\infty} \left(e^{-\frac{M}{2}\varrho \cos \varphi} - (-1)^n e^{\frac{M}{2}\varrho \cos \varphi} \right) \frac{I'_n\left(\frac{M}{2}\right)}{I_n\left(\frac{M}{2}\right)} I_n\left(\frac{M}{2}\varrho\right) e^{in\varphi} \right] \\ &\quad - \frac{P}{M} \varrho \cos \varphi, \\ u(\varrho, \varphi) &= \frac{P}{2M} \left[\sum_{n=-\infty}^{\infty} \left(e^{-\frac{M}{2}\varrho \cos \varphi} + (-1)^n e^{\frac{M}{2}\varrho \cos \varphi} \right) \frac{I'_n\left(\frac{M}{2}\right)}{I_n\left(\frac{M}{2}\right)} I_n\left(\frac{M}{2}\varrho\right) e^{in\varphi} \right]. \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

Aus diesen Gleichungen kann man mit (2) und (3) die elektrische Feldstärke und die Stromdichteverteilung berechnen. Die Formeln sind jedoch recht unhandlich. Einfacher ist der Ausdruck für die Durchflußmenge.

$$\left. \begin{aligned} Q &= -a^2 v_0 \frac{P}{2M} \sum_{n=0}^{\infty} \varepsilon_n (-1)^n \frac{I'_n\left(\frac{M}{2}\right)}{I_n\left(\frac{M}{2}\right)} I_{n-1}\left(\frac{M}{2}\right) I_{n+1}\left(\frac{M}{2}\right) \\ \varepsilon_0 &= 1, \quad \varepsilon_n = 2 \quad \text{für } n \neq 0. \end{aligned} \right\} \quad (27)$$

Ebenfalls elementar wird der Ausdruck für die Geschwindigkeit und das Magnetfeld in der Achse.

$$H_z(\text{Achse}) = 0, \quad (28)$$

$$v_z(\text{Achse}) = -\frac{a^2}{\eta} \frac{\partial p}{\partial z} \frac{I_1\left(\frac{M}{2}\right)}{M I_0\left(\frac{M}{2}\right)}. \quad (29)$$

Für $M \rightarrow 0$ resultiert der hydromechanische Fall

$$\overset{\circ}{v}_z(\text{Achse}) = -\frac{1}{4} \frac{a^2}{\eta} \frac{\partial p}{\partial z}. \quad (30)$$

Das Verhältnis

$$\frac{v_z(\text{Achse})}{\bar{v}_z(\text{Achse})} = 2 \frac{I_1\left(\frac{M}{2}\right)}{\frac{M}{2} I_0\left(\frac{M}{2}\right)} \quad (31)$$

ist in Fig. 2 dargestellt.

Für große M verschwindet dieser Ausdruck wie $4/M$.

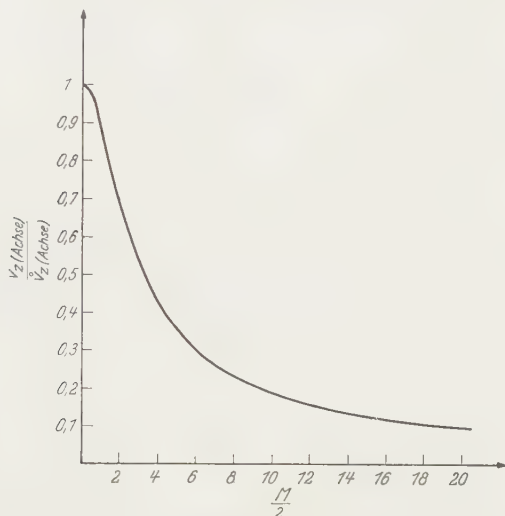


Fig. 2. Normierte Axialgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Hartmann-Zahl

5. Die Stromdichteverteilung für schwache äußere Magnetfelder

Der Einfluß des Magnetfeldes auf die Strömung wird besonders deutlich, wenn man die Gln. (25) und (26) nach Potenzen von $M/2$ entwickelt. In der nullten Näherung, d. h. für $M=0$, erhält man natürlich den hydromechanischen Fall

$$H_z = 0, \quad (32)$$

$$v_z = -\frac{a^2}{4\eta} \frac{\partial p}{\partial z} \left(1 - \frac{r^2}{a^2}\right). \quad (33)$$

In höherer Näherung gilt

$$H_z = \left(\frac{\sigma}{\eta}\right)^{\frac{1}{2}} a \frac{\partial p}{\partial z} \frac{M}{16} r \cos \varphi \left(1 - \frac{r^2}{a^2}\right) \left[1 + \frac{M^2}{192} \left(\frac{3r^2}{a^2} + \frac{2r^2 \cos 2\varphi}{a^2} - 8\right)\right], \quad (34)$$

$$v_z = -\frac{a^2}{4\eta} \frac{\partial p}{\partial z} \left(1 - \frac{r^2}{a^2}\right) \left\{ 1 + \frac{M}{16} \left(\frac{r^2 - a^2}{2a^2} + \frac{r^2 \cos 2\varphi}{3a^2}\right) + \right. \\ \left. + \frac{M^4}{1536} \left(\frac{(a^2 - r^2)(2a^2 - r^2)}{a^4} + \frac{6r^2 - 13a^2}{6a^4} r^2 \cos 2\varphi + \frac{r^4 \cos 4\varphi}{10a^4}\right) \right\}. \quad (35)$$

13*

Nach Gl. (3) kann man aus H_z die zugehörige Stromverteilung berechnen. Man erhält in Polarkoordinaten

$$\mathbf{j} = -\left(\frac{\sigma}{\eta}\right)^{\frac{1}{2}} a \frac{\partial p}{\partial z} \frac{M}{16} \left[\sin \varphi \left(1 - \frac{r^2}{a^2}\right) \mathbf{e}_r + \cos \varphi \left(1 - \frac{3r^2}{a^2}\right) \mathbf{e}_\varphi \right]. \quad (36)$$

Die Stromlinien des Vektors \mathbf{j} lauten in Polarkoordinaten

$$1 - \frac{r^2}{a^2} = \frac{Ca}{r \cos \varphi}. \quad (37)$$

Der Verlauf dieser Funktion für verschiedene Werte von C ist in der Fig. 3 dargestellt.

Für C gilt die Bedingung

$$|C| < \frac{2}{9} \sqrt{3} a^3. \quad (38)$$

An der Stelle $x = \pm \frac{1}{3} a \sqrt{3}$, $y = 0$, verschwindet die Stromdichte. Dieser Punkt wandert mit wachsendem äußerem Magnetfeld immer näher an die Rohrwand. Man erhält für sehr starke Felder den Strömungsverlauf nach Fig. 4, der von SHERCLIFF angegeben wird.

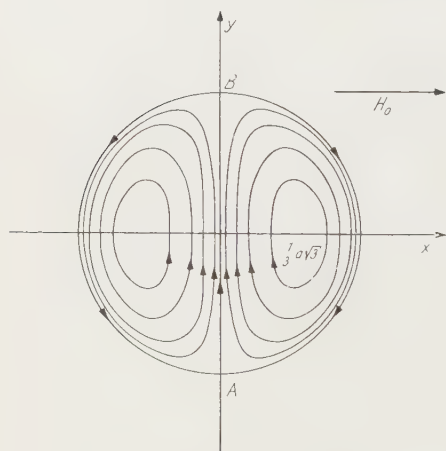


Fig. 3. Stromverlauf in der leitenden Flüssigkeit für kleine Hartmann-Zahlen

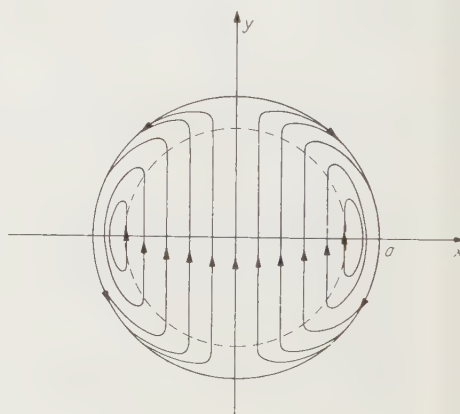


Fig. 4. Stromverlauf in der leitenden Flüssigkeit für große Hartmann-Zahlen (nach SHERCLIFF)

6. Die Verteilung der elektrischen Feldstärke für schwache Magnetfelder

Zur Berechnung der elektrischen Feldstärke greift man zweckmäßigerweise auf Formel (2) zurück

$$\mathfrak{E} = \frac{1}{\sigma} \mathbf{j} - \mu (\mathbf{v} \times \mathfrak{H}) \quad (39)$$

oder in Komponenten

$$\left. \begin{aligned} E_r &= \frac{j_r}{\sigma} - \mu H_0 v_z \sin \varphi \\ E_\varphi &= \frac{j_\varphi}{\sigma} - \mu H_0 v_z \cos \varphi \end{aligned} \right\} \quad (40)$$

Unter Benutzung von (35) und (36) folgt sofort

$$\left. \begin{aligned} E_r &= \frac{3M}{16} \frac{a}{(\sigma\eta)^{\frac{1}{2}}} \frac{\partial p}{\partial z} \sin \varphi \left(1 - \frac{r^2}{a^2}\right) \\ E_\varphi &= \frac{3M}{16} \frac{a}{(\sigma\eta)^{\frac{1}{2}}} \frac{\partial p}{\partial z} \cos \varphi \left(1 - \frac{r^2}{3a^2}\right) \end{aligned} \right\} \quad (41)$$

Die Feldlinien werden durch die Gleichung

$$1 - \frac{r^2}{a^2} = \frac{C r^3}{a^3} \cos^3 \varphi \quad (42)$$

beschrieben. Ihr Verlauf ist in Fig. 5 wiedergegeben.

Für die Anwendung der beschriebenen Anordnung als Strömungsmesser ist die Spannung zwischen den Punkten *A* und *B* von Bedeutung. Aus dem Ergebnis (41) erhält man ohne weiteres mit

$$\left. \begin{aligned} V_{AB} &= \int_a^0 E_r \left(r, -\frac{\pi}{2}\right) dr + \\ &+ \int_0^a E_r \left(r, \frac{\pi}{2}\right) dr = 2 \int_0^a E_r \left(r, \frac{\pi}{2}\right) dr \end{aligned} \right\} \quad (43)$$

in der ersten Näherung

$$V_{AB} = \frac{M}{4} \frac{a}{(\sigma\eta)^{\frac{1}{2}}} \frac{\partial p}{\partial z} \quad (44)$$

und in höherer Näherung

$$V_{AB} = \frac{M}{4} \frac{a}{(\sigma\eta)^{\frac{1}{2}}} \frac{\partial p}{\partial z} \left(1 - \frac{13M^2}{576}\right). \quad (45)$$

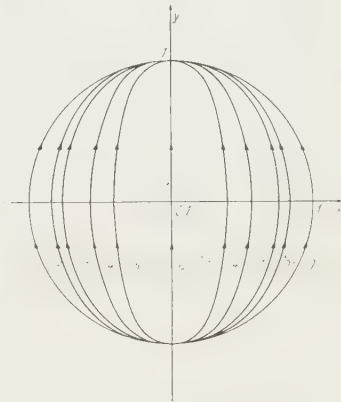


Fig. 5. Feldlinien des induzierten elektrischen Feldes

7. Berechnung der Durchflußmenge bei schwachen Magnetfeldern

Die Entwicklung der Gl. (27) nach Potenzen von $M/2$ liefert bis zur vierten Näherung für die Durchflußmenge den Wert

$$Q = -\frac{\pi}{8} \frac{\partial p}{\partial z} \frac{a^4}{\eta} \left(1 - \frac{M^2}{48} + \frac{7M^4}{9216} \dots\right). \quad (46)$$

Mit dieser Größe läßt sich die mittlere Geschwindigkeit im Rohr ausrechnen. Wegen

$$Q = \pi a^2 v_0 \quad (47)$$

folgt sofort

$$v_0 = -\frac{1}{8} \frac{\partial p}{\partial z} \frac{a^2}{\eta} \left(1 - \frac{M^2}{48} + \frac{7M^4}{9216} \dots \right). \quad (48)$$

Diese Formel wird auch von SHERCLIFF angegeben.

Zusammenfassung

Die aus den exakten Lösungen (25) und (26) abgeleiteten Näherungen für die induzierte Spannung und die Durchflußmenge bestätigen die Ergebnisse von SHERCLIFF. Die Untersuchung des induzierten magnetischen Feldes zeigt, daß für beliebige M die Feldstärke in der Achse identisch Null wird. Dies folgt auch aus dem Verlauf der Stromdichte nach Fig. 3. Die entwickelten Näherungsformeln sind bis $M = 2,5$ zu gebrauchen. Diesen Wert findet man jedoch nur bei schwach leitenden Flüssigkeiten. Bei flüssigen Metallen kann die Hartmann-Zahl sehr große Werte annehmen. Dann zeigt die Strömung Grenzschichtcharakter und die daraus resultierenden Vereinfachungen der Grundgleichungen erlauben wiederum die Berechnung des Strömungsverhaltens. Für mittlere Hartmann-Zahlen muß man die exakten Lösungen aufsummieren. Dies ist für eine genauere Untersuchung von Bedeutung, der qualitative Verlauf aller interessierenden Größen wird jedoch durch die entwickelten Näherungen in befriedigender Weise wiedergegeben.

Für die Anregung zur Bearbeitung einer Anzahl hydromagnetischer Probleme, unter anderem dem vorliegenden, und für sein kritisches Interesse an der Durchführung der Arbeit sind wir Herrn Professor Dr.-Ing. W. Fucks zu Dank verpflichtet.

Lehrstuhl für physikalische Grundlagen der Reaktorwerkstoffe
Technische Hochschule, Aachen

Über die Temperaturabhängigkeit der Lichtabsorption durch Excitonen*

Von
W. BIEM**

Mit 3 Figuren im Text

(Eingegangen am 17. Mai 1961)

The temperature dependence of the absorption of light by excitons is considered. The eigenfunctions of the excitons are those of the vibrating crystal, introduced by TJABLIKOW, LEE, LOW, and PINES a. o. The model can only be used if the coupling between excitons and crystal vibrations is weak. The results are expressions for the production of excitons and simultaneous absorption or emission of phonons.

§ 1. Einleitung

Die experimentelle Untersuchung der Absorption des Lichtes durch Excitonen¹ in nicht oder schwach polaren Kristallen hat, obwohl noch nicht sehr viel Material vorliegt, ergeben, daß die Form der Absorptionslinien unsymmetrisch ist und sich mit der Temperatur verbreitert und verschiebt^{2,3}. Während die Form der Excitonenlinien in polaren Kristallen durch Y. TOYOZAWA⁴ behandelt worden ist, scheint es erforderlich zu sein, für ein isoliertes Excitonenband, das schwach an das Gittergekoppelt ist, die Lichtabsorption neu zu berechnen. Zwar hat Y. TOYOZAWA auch hier eine Theorie veröffentlicht⁵, in der die Excitonen wie im starren Kristall beschrieben werden und dann ihre Streuung am Kristallschallfeld berechnet wird, aber die Rechnung ist durchgeführt worden für die Näherung mit effektiven Massen. Hier dagegen stellen wir im Anschluß an TJABLIKOW⁶, LEE, LOW und PINES⁷ u. a. in § 2 ein vollständiges System von orthonormierten Wellenfunktionen für das Exciton mit möglicherweise angeregtem Schallfeld auf. Die Polarisation

* D 82 (Auszug. Diss. T.H. Aachen).

** Jetzt MPI für Physik und Astrophysik, München.

¹ Die Excitonenliteratur bis 1958 ist sehr gut zusammengefaßt bei H. HAKEN, Fortschr. Phys. **6**, 271 (1958).

² GROSS, E.F.: Suppl. al Volume III, Serie X, Nuovo Cimento 1956, 672 (Zusammenfassung).

³ NIKITINE, S.: J. Phys. Radium **17**, 817 (1956) (Zusammenfassung).

⁴ TOYOZAWA, Y.: Vorabdruck 1959.

⁵ TOYOZAWA, Y.: Progr. Theoret. Phys. **20**, 53 (1958).

⁶ TJABLIKOW, S.V.: Ž. eksp. teor. Fiz. SSR. **30**, 959 (1952).

⁷ LEE, I., F. LOW and D. PINES: Phys. Rev. **90**, 197 (1953).

des Kristalles wird dabei in der Wellenfunktion durch Parameter α_i^λ beschrieben, die in bekannter Weise eine Verschiebung der Gitteroszillatoren bedeuten.

Mit diesen Wellenfunktionen wird in §3 die Lichtabsorption berechnet. Dadurch können wir qualitativ die Veränderung der Absorptionslinien mit der Temperatur erklären. Quantitativ ist das nur beschränkt möglich, weil das Excitonenspektrum und die Parameter α_i^λ für jede in Frage kommende Substanz im einzelnen berechnet werden müßten. Im Schluß besprechen wir die wenigen experimentellen Ergebnisse, die bisher vorliegen.

§ 2. Die Excitonen im Kristall

a) Hamilton-Operator und Wellenfunktion

Der betrachtete Kristall vom Periodizitätsvolumen V habe N Elementarzellen des Zellvolumens V_Z . Die Elementarzellen werden durch die Koordinaten \mathfrak{R}_n eines Eckpunktes bezeichnet. $n = \{n_1 n_2 n_3\}$ ist ein dreidimensionaler Index. Mit den Elementartranslationen a_i des Gitters gilt $\mathfrak{R}_n = \sum_{i=1}^3 a_i n_i$. Jede Zelle enthalte L Atome der Massen M_l an den mittleren Orten \mathfrak{R}^l ($l=1, \dots, L$), vom obigen Eckpunkt aus gemessen, so daß $\mathfrak{R}_n^l = \mathfrak{R}_n + \mathfrak{R}^l$ die Atome im Kristall kennzeichnet.

Der Kristall⁸ hat $3L$ Zweige von Eigenschwingungen mit den Dispersionsfunktionen $\omega^\lambda(\mathfrak{k}) = \omega_{\mathfrak{k}}^\lambda$ ($\lambda=1, \dots, 3L$), wobei \mathfrak{k} nur Werte für Schwingungen periodisch in V annehmen darf.

Die Theorie führen wir mit den Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren $b_{\mathfrak{k}}^{\lambda+}$ und $b_{\mathfrak{k}}^\lambda$ durch. Diese erfüllen die üblichen Minusvertauschungsrelationen. Sie hängen linear von den Normalkoordinaten $q_{\mathfrak{k}}^\lambda$ und den zugehörigen Impulsen $p_{\mathfrak{k}}^\lambda$ ab:

$$q_{\mathfrak{k}}^\lambda = \sqrt{\frac{\hbar}{2M\omega_{\mathfrak{k}}^\lambda}} (b_{\mathfrak{k}}^\lambda - b_{-\mathfrak{k}}^{\lambda+}), \quad p_{\mathfrak{k}}^\lambda = \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\mathfrak{k}}^\lambda M}{2}} (-i) (b_{\mathfrak{k}}^\lambda + b_{-\mathfrak{k}}^{\lambda+}) \quad (2.1)$$

mit

$$M = \frac{1}{L} \sum_{l=1}^L M_l.$$

Der Hamilton-Operator für die Schwingungen lautet

$$H_s = \sum_{\mathfrak{k}\lambda} \hbar \omega_{\mathfrak{k}}^\lambda b_{\mathfrak{k}}^{\lambda+} b_{\mathfrak{k}}^\lambda. \quad (2.2)$$

Mit Φ^0 als Schallquantenvakuumzustand und den Besetzungszahlen $n_{\mathfrak{k}}^\lambda$ ($\mathfrak{R} = \{n_{\mathfrak{k}}^\lambda\}$) lauten die orthonormierten Eigenfunktionen

$$\Phi^{\mathfrak{R}} = \beta^{\mathfrak{R}+} \Phi^0 \quad \text{mit} \quad \beta^{\mathfrak{R}+} = \prod_{\mathfrak{k}\lambda} \frac{(b_{\mathfrak{k}}^{\lambda+})^{n_{\mathfrak{k}}^\lambda}}{\sqrt{n_{\mathfrak{k}}^\lambda!}}. \quad (2.3)$$

⁸ Für die Formeln aus der Kristallphysik vgl. z. B. G. LEIBFRIED, Handbuch der Physik, Bd. VII/1, S. 104. 1955.

Verschieben wir den Schwingungszustand der Atome gegenüber dem Gitter um einen Gittervektor \mathfrak{R}_q und bezeichnen den Operator, der das bewirkt mit T_q^g , so gilt

$$T_q^g b_i^\lambda = b_i^\lambda e^{-i\mathfrak{f}\mathfrak{R}_q} T_q^g, \quad T_q^g b_i^{\lambda+} = b_i^{\lambda+} e^{i\mathfrak{f}\mathfrak{R}_q} T_q^g. \quad (2.4)$$

Bei Anwendung von T_q^g bleibt H_S invariant, und $\Phi^{\mathfrak{R}}$ ändert nur seine Phase.

Wir betrachten Isolatoren und behandeln die Elektronen im Bändermodell. Der Einfachheit halber nehmen wir an, daß sowohl das besetzte Valenzband wie das leere Leitungsband einfach sind. $2N$ Elektronen sollen also im Grundzustand das Valenzband füllen.

Der Hamilton-Operator der Elektronen lautet

$$H_e = \sum_{i=1}^{2N} h(i) + \sum_{i>j=1}^{2N} \tilde{h}(ij) - E_e. \quad (2.5)$$

Darin ist $h(i)$ der Hamilton-Operator des i -ten Elektrons im periodischen Feld $V(\mathfrak{r}_i)$ der Ionenrümpfe, $\tilde{h}(ij)$ die Coulomb-Energie zwischen den Elektronen i und j und E_e ist eine Konstante, die so gewählt wurde, daß der Grundzustand die Energie Null hat.

Nennen wir den Grundzustand der Elektronen A_0 , so gilt also

$$H_e A_0 = 0. \quad (2.6)$$

A_0 ist eine Slater-Determinante aus den Bloch-Funktionen oder ihren Fouriertransformierten, den Wannier-Funktionen. Wir benutzen in der Hauptsache die Wannier-Funktionen:

$$A_0 = \frac{1}{\sqrt{(2N)!}} \sum_P (-1)^P \cdot P w_{m_1}^+(r_1) w_{m_1}^-(r_2) \dots w_{m_N}^-(r_{2N}). \quad (2.7)$$

r_i faßt hier Orts- und Spinkoordinaten (\mathfrak{r}_i, s_i) des i -ten Elektrons zusammen. Der Index $+$ oder $-$ gibt die Richtung des Spins zu einer beliebigen aber festen Richtung an. Die Wannier-Funktion haben wir mit $w_m(r)$ bezeichnet. Sie ist rund um die Zelle mit dem Index m konzentriert, braucht sich aber nicht auf das Zellvolumen zu beschränken.

In A_0 sind in jeder Zelle zwei Elektronen, beide mit der Ortsfunktion $\varphi_m(r) = \varphi(r - \mathfrak{R}_m)$, aber eines mit der Spinfunktion α und das andere mit der Spinfunktion β :

$$w_{m_i}^\pm = \varphi_{m_i}(r) \begin{matrix} \alpha \\ \beta \end{matrix} (s). \quad (2.8)$$

Nennen wir S den Operator des Gesamtspins des Elektronensystems, so ist A_0 Eigenfunktion von S_z und S^2 zum Eigenwert Null.

Die Wannier-Funktionen des Leitungsbandes bezeichnen wir entsprechend:

$$u_{m_i}^{\pm}(r) = \bar{\varphi}_{m_i}(r) \frac{\alpha}{\beta}(s). \quad (2.9)$$

Zur Beschreibung von Excitonen bilden wir Slaterdeterminanten, in denen *ein* Elektron im Valenzband fehlt und dafür *eines* im Leitungsband vorkommt, z. B.

$$A_{mn}^{+-} = \frac{1}{\sqrt{(2N)!}} \sum_P (-1)^P \cdot P w_{m_1}^+(r_1) \dots u_n^-(r_j) w_{m_j}^-(r_{j+1}) \dots w_{m_N}^-(r_{2N}). \quad (2.10)$$

Hier ist in der Zelle m ein Loch im Valenzband und dafür in der Zelle n ein Elektron im Leitungsband. Das herausgenommene Elektron hatte einen $(+)$ -Spin. Wir können daher auch sagen, wir haben das Valenzband vor uns mit einem Loch in der Zelle m mit $(-)$ -Spin. Gegenüber A_0 hat also A^{+-} den Eigenwert $(-1)\hbar$ von S_z und ist eine Komponente eines Triplets von S^2 .

Auch die anderen Eigenfunktionen von S_z und S^2 können wir leicht angeben:

$$\left. \begin{aligned} A_{mn}^{+-} &= A_{mn}^{t,1} \\ \frac{1}{\sqrt{2}} (A_{mn}^{++} - A_{mn}^{--}) &= A_{mn}^{t,0} \\ A_{mn}^{+-} &= A_{mn}^{t,-1} \end{aligned} \right\} \text{Triplet} \quad \left. \begin{aligned} \frac{1}{\sqrt{2}} (A_{mn}^{++} + A_{mn}^{--}) &= A_{mn}^{s,0} \end{aligned} \right\} \text{Singulett.} \quad (2.11)$$

Die Quantenzahl in bezug auf S_z (die Indices 1, 0, -1) lassen wir im folgenden wieder weg. Mit σ bezeichnen wir die Quantenzahl von $S^2 = \hbar^2 \sigma(\sigma+1)$, die 0 oder 1 ist. In A_{mn}^{σ} schreiben wir statt 0 oder 1 die Buchstaben s oder t .

Die Excitonzustände im starren Kristall lassen sich durch Linearkombinationen aus den A_{mn}^{σ} darstellen:

$$\bar{\Psi}_{\mathfrak{R}}^j = \frac{1}{N} \sum_{mn} U_{\mathfrak{R}}^j(m-n) e^{-i \frac{\mathfrak{R}}{2} \mathfrak{R}_{m+n}} A_{mn}^{\sigma}. \quad (2.12)$$

Hier bedeutet \mathfrak{R} den Wellenvektor der Translationsbewegung des Excitons als Ganzem. $U_{\mathfrak{R}}^j(m-n)$ enthält die Relativbewegung von Elektron und Loch im Exciton. Es hängt ab von $\mathfrak{R}_m - \mathfrak{R}_n = \mathfrak{R}_{m-n}$ und trägt noch einen Index j zur Numerierung der Excitonenbänder. U hängt schwach von \mathfrak{R} und σ ab und trägt daher auch diese beiden Indices.

Nennen wir T_q^e den Operator, der die Elektronen um den Gittervektor \mathfrak{R}_q verschiebt, so ist T_q^e mit H_e vertauschbar und es gilt

$$\left. \begin{aligned} T_q^e A_0 &= A_0 \\ T_q^e \bar{\Psi}_{\mathfrak{R}}^j &= e^{i \mathfrak{R} \mathfrak{R}_q} \bar{\Psi}_{\mathfrak{R}}^j \end{aligned} \right\} \quad (2.13)$$

Der Wechselwirkungsoperator zwischen Gitterschwingungen und Elektronen sei in der üblichen Weise abgeleitet unter der Voraussetzung, daß er linear in den Auslenkungen und den Impulsen der Kerne ist. Er hat dann stets die Form

$$H_{es} = \sum_{\mathbf{k}, \lambda, i} (C_{\mathbf{k}}^{\lambda} b_{\mathbf{k}}^{\lambda} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_i} + C_{\mathbf{k}}^{\lambda*} b_{\mathbf{k}}^{\lambda*} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_i}). \quad (2.14)$$

Zum Beispiel ist für den optisch longitudinalen Zweig und lange Wellen in einfachen Ionenkristallen nach FRÖHLICH⁹ $C_{\mathbf{k}}^{\text{opt. long.}} = i \frac{4\pi}{|\mathbf{k}|} \left[\frac{e^2 \hbar}{2A \omega_0 V} \right]$ (mit $A = \frac{4\pi}{\omega_0^2} \left(\frac{1}{\epsilon_{\infty}} - \frac{1}{\epsilon_0} \right)$, ω_0 longitudinale Reststrahlenfrequenz, ϵ_0 statische und ϵ_{∞} optische Dielektrizitätskonstante).

Wenn H_{es} nur von den Auslenkungen der Kerne, nicht aber von ihren Impulsen abhängt, ist $C_{-\mathbf{k}}^{\lambda*} = -C_{\mathbf{k}}^{\lambda}$. Das trifft z.B. für das Modell von FRÖHLICH zu, das wir oben erwähnt haben. Da hängen die $C_{\mathbf{k}}^{\lambda}$ nur von $|\mathbf{k}|$ ab und sie sind also sogar rein imaginär.

Der gesamte Hamilton-Operator für den Kristall lautet somit

$$H = H_e + H_s + H_{es}. \quad (2.15)$$

Er ist mit $T_q = T_q^g \cdot T_q^e$ vertauschbar.

Den Ansatz für das Exciton gewinnen wir nach ^{1, 6, 7}. Dabei soll ein Loch in Zelle m und ein Elektron in Zelle n das Ion, das im ungestörten Kristall um die Ruhelage \mathfrak{R}_s^l schwingt um die neue Ruhelage $\mathfrak{R}_s^l + \mathfrak{t}_s^{mn}$ schwingen lassen. Nennen wir \mathfrak{P}_s^l die Impulse der Ionen, so bewirkt der Operator

$$O^{mn} = e^{\frac{i}{\hbar} \sum_{s,l} \mathfrak{p}_s^{mn} \mathfrak{P}_s^l} \quad (2.16)$$

angewandt auf die Wellenfunktion der Ionen die Verschiebung \mathfrak{t}_s^{mn} .

Mit den Operatoren $b_{\mathbf{k}}^{\lambda*}$ und $b_{\mathbf{k}}^{\lambda}$ kann O^{mn} auf die Form

$$O^{mn} = e^{\sum_{\mathbf{k}, \lambda} b_{\mathbf{k}}^{\lambda*} \alpha_{\mathbf{k}}^{\lambda} e^{-i\frac{\mathbf{k}}{2} \cdot \mathfrak{R}_{m+n}} - b_{\mathbf{k}}^{\lambda} \alpha_{\mathbf{k}}^{\lambda*} e^{i\frac{\mathbf{k}}{2} \cdot \mathfrak{R}_{m+n}}} \quad (2.17)$$

gebracht werden. Dabei wurde noch speziell angenommen, daß \mathfrak{t}_s^{mn} nur vom Schwerpunkt des Excitons \mathfrak{R}_{m+n} abhängt und nicht auch vom Ort der Bestandteile Elektron und Loch. Weil wir uns nur für das Exciton im Grundzustand interessieren, das den kleinsten Radius hat, gilt diese Näherung hier besser als bei angeregten Zuständen. Die Güte

⁹ FRÖHLICH, H.: Adv. Physics **3**, 325 (1954).

der Näherung hängt auch davon ab, für welches Material wir die Excitonen betrachten. In Stoffen mit großer Dielektrizitätskonstante haben Elektron und Loch einen großen mittleren Abstand voneinander, verglichen mit dem Abstand nächster Nachbarn im Gitter. Darum wird hier die Polarisation des Gitters mehr durch Elektron und Loch für sich als durch das Exciton als Ganzes hervorgerufen. Unser Modell gilt daher nur für Stoffe mit kleiner Dielektrizitätskonstante.

O^{mn} ist unitär

$$O^{mn\dagger} = O^{mn-1}. \quad (2.18)$$

Für O^{mn} und Funktionen von b^+ und b gelten folgende Rechenregeln:

$$e^{b^+A - bA^*} = e^{-\frac{1}{2}|A|^2} e^{b^+A} e^{-bA^*}, \quad (2.19)$$

$$e^{bA^*} b^+ = (b^+ + A^*) e^{bA^*}, \quad (2.20)$$

$$b e^{b^+A} = e^{b^+A} (b + A) \quad (2.21)$$

oder allgemeiner

$$e^{bA^*} f(b^+) = f(b^+ + A^*) e^{bA^*}. \quad (2.21)$$

und

$$e^{bA^*} e^{b^+A} = e^{A^*A} e^{b^+A} e^{bA^*}. \quad (2.22)$$

Der Ansatz für die Wellenfunktion des Excitons lautet damit

$$\Re \Psi_{\mathbf{R}}^j = \frac{1}{N} \sum_{mn} U_{\mathbf{R}}^j(m-n) e^{-i\frac{\mathbf{R}}{2} \cdot \mathbf{R}_{m+n}} A_{mn}^{\sigma} O^{mn} \Phi^{\Re}. \quad (2.23)$$

Diese Funktionen sind orthogonal und normiert für jeden festen Satz von $\alpha_{\mathbf{t}}^{\lambda}$. Außerdem sind sie Eigenfunktionen zu $T_{\mathbf{q}}$

$$T_{\mathbf{q}} \Re \Psi_{\mathbf{R}}^j = e^{i\left(\mathbf{R} + \sum_{\mathbf{t}} \mathbf{t} n_{\mathbf{t}}^{\lambda}\right) \cdot \mathbf{R}_{\mathbf{q}}} \Re \Psi_{\mathbf{R}}^j. \quad (2.24)$$

Die Reihenfolge der Faktoren O^{mn} und $\beta^{\Re+}$ im Produkt $O^{mn} \Phi^{\Re} = O^{mn} \beta^{\Re+} \Phi^0$ in (2.23) ist dadurch festgelegt, daß für verschwindende Kopplung Anschluß an das Ergebnis der Schrödingerschen Störungsrechnung bestehen muß.

Im folgenden betrachten wir ein isoliertes Excitonenband, lassen also die Indices j und σ in (2.23) wieder fort.

b) Die Parameter $\alpha_{\mathbf{t}}^{\lambda}$

Die $\alpha_{\mathbf{t}}^{\lambda}$ in Formel (2.17) betrachten wir als Variationsparameter, die aus der Extremalbedingung für die Energie des Excitons ermittelt werden.

Dazu müssen wir

$$E_{\mathbf{R}}(U_{\mathbf{R}}, \alpha_{\mathbf{t}}^{\lambda}) = (\Psi_{\mathbf{R}}, H \Psi_{\mathbf{R}}) \quad (2.25)$$

berechnen. Wir nehmen U_R unverändert wie im starren Kristall an. Die Energielücke zwischen unserem Excitonenzustand und höheren angeregten Excitonen und den freien Elektronen im Leitungsband muß daher groß sein gegen die Energie der Schallquanten, d.h. gegen die Quanten der optischen Zweige ($\sim 1/50$ eV). Daher sind Halbleiter ungeeignet für unser Modell im Gegensatz zu Isolatoren mit großer Isolatorlücke und kleiner Dielektrizitätskonstante. Es wird sich weiter unten herausstellen, daß die obige Einschränkung wirklich genügt.

Durch Variation von (2.25) nach $\alpha_t^{\lambda*}$ oder α_t^{λ} wählen wir auf jeden Fall zwischen Zuständen ohne Anteil des Grundzustandes $A_0 \Phi^{\mathfrak{R}}$, denn der ist orthogonal zu jedem Ψ_R^j .

H besteht aus drei Teilen, daher sind drei Erwartungswerte $\alpha) \beta) \gamma)$ berechnet worden. Der von H_s ist exakt, während die beiden anderen nur genau für $n_t^{\lambda}=0$ oder 1 sind. Es sind alle Summen $\sum_{t\lambda}$ fortgelassen worden, die eine Potenz $(1/N)^p$ ($p \geq 2$) als Faktor haben und daher mit $N \rightarrow \infty$ verschwinden.

$$\alpha) \quad \langle \mathfrak{R} \Psi_R, H_s \mathfrak{R} \Psi_R \rangle = \hbar \sum_{t\lambda} \omega_t^{\lambda} (n_t^{\lambda} + |\alpha_t^{\lambda}|^2), \quad (2.26)$$

$$\beta) \quad \langle \mathfrak{R} \Psi_R, H_e \mathfrak{R} \Psi_R \rangle = \frac{1}{N^2} \sum_{\substack{m n \\ m' n'}} U_R^*(m-n) U_R(m'-n') e^{i \frac{\mathfrak{R}}{2} \mathfrak{R}_{m+n-m'-n'}} \times \\ \times (A_{m n}, H_e A_{m' n'}) \cdot M^{\mathfrak{R}}(m+n-m'-n'). \quad (2.27)$$

Dabei ist

$$\text{und} \quad \left. \begin{aligned} M^{\mathfrak{R}}(m+n-m'-n') &= (O^{m n} \Phi^{\mathfrak{R}}, O^{m' n'} \Phi^{\mathfrak{R}}) \\ M^{\mathfrak{R}}(m) &= e^{-\sum_{t\lambda} |\alpha_t^{\lambda}|^2 (1 - \cos \frac{\mathfrak{R}}{2} \mathfrak{R}_m) (1 + 2n_t^{\lambda})} \end{aligned} \right\} \quad (2.28)$$

Für den dritten Anteil ergibt sich mit der Abkürzung

$$\tilde{C}_t^{\lambda} = C_t^{\lambda} ((\bar{\varphi}_n, e^{i\mathfrak{R}} \bar{\varphi}_{n'}) \delta_{m m'} - (\varphi_m, e^{i\mathfrak{R}} \varphi_{m'}) \delta_{n n'}) \quad (2.29)$$

$$\gamma) \quad \langle \mathfrak{R} \Psi_R, H_e \mathfrak{R} \Psi_R \rangle = \frac{1}{N^2} \left[\sum_{\substack{m n \\ m' n'}} U_R^*(m-n) U_R(m'-n') e^{i \frac{\mathfrak{R}}{2} \mathfrak{R}_{m+n-m'-n'}} \times \right. \\ \times M^{\mathfrak{R}}(m+n-m'-n') \sum_{t\lambda} \tilde{C}_t^{\lambda} \alpha_t^{\lambda} e^{-i \frac{\mathfrak{R}}{2} \mathfrak{R}_{m'+n'}} \times \\ \left. \times \left(1 + n_t^{\lambda} (1 - e^{-i \frac{\mathfrak{R}}{2} \mathfrak{R}_{m+n-m'-n'}}) \right) + \text{cc.} \right] \quad (2.30)$$

$\mathfrak{R} E_R$, die zu variierende Energie, ist die Summe aus $\alpha), \beta)$ und $\gamma)$. Wir können sogleich ablesen, daß es auf jeden Fall α_t^{λ} gibt, die $\mathfrak{R} E_R$ zum Minimum machen. Denn für $\alpha_t^{\lambda}=0$ ist $\mathfrak{R} E_R = \bar{E}_R + E_s$, wo \bar{E}_R die

Energie des Excitons im starren Gitter und $E_s = \hbar \sum_{\mathbf{l}\lambda} \omega_{\mathbf{l}}^{\lambda} n_{\mathbf{l}}^{\lambda}$ die Energie des Schallfeldes ist. Für jeden anderen Satz von $\alpha_{\mathbf{l}}^{\lambda}$ hat ${}^{\mathfrak{N}}E_{\mathfrak{R}}$ einen wohldefinierten Wert. Wachsen die $\alpha_{\mathbf{l}}^{\lambda}$ unbegrenzt, so strebt auch ${}^{\mathfrak{N}}E_{\mathfrak{R}}$ wegen des ersten Gliedes gegen Unendlich. Daher muß es Werte von $\alpha_{\mathbf{l}}^{\lambda}$ geben, die ${}^{\mathfrak{N}}E_{\mathfrak{R}}$ zum Minimum machen. Die $\alpha_{\mathbf{l}}^{\lambda}$ wirklich zu berechnen ist viel schwieriger.

Die Gleichungen

$$\frac{\partial {}^{\mathfrak{N}}E_{\mathfrak{R}}}{\partial \alpha_{\mathbf{l}}^{\lambda*}} = 0 \quad (2.31)$$

stellen das Gleichungssystem dar, aus dem die $\alpha_{\mathbf{l}}^{\lambda}$ ermittelt werden müssen, die ${}^{\mathfrak{N}}E_{\mathfrak{R}}$ zum Minimum machen. Es läßt sich nur näherungsweise lösen, etwa durch ein Iterationsverfahren. Wir nennen die Energie $({}^{\mathfrak{N}}E_{\mathfrak{R}})_{\min} = E^{\mathfrak{N}}(\mathfrak{R})$.

In der Näherung der Störungsrechnung bei sehr schwacher Wechselwirkung ($\sum_{\mathbf{l}\lambda} |\alpha_{\mathbf{l}}^{\lambda}|^2 \ll 1$) werden die Formeln einfach:

$$\left. \begin{aligned} \alpha_{\mathbf{l}}^{\lambda} = & \frac{1}{N^2} \sum_{\substack{\mathbf{m}\mathbf{n} \\ \mathbf{m}'\mathbf{n}'}} U^*(\mathbf{m} - \mathbf{n}) U(\mathbf{m}' - \mathbf{n}') \times \\ & \times e^{i \cdot \frac{\mathbf{r}}{2} \cdot \mathfrak{R}_{\mathbf{m}+\mathbf{n}-\mathbf{m}'-\mathbf{n}'}} \tilde{C}_{\mathbf{l}}^{\lambda*} e^{i \cdot \frac{\mathbf{r}}{2} \cdot \mathfrak{R}_{\mathbf{m}'+\mathbf{n}'}} \cdot \frac{1}{\hbar \omega_{\mathbf{l}}^{\lambda}} \end{aligned} \right\} \quad (2.32)$$

Die $\alpha_{\mathbf{l}}^{\lambda}$ sind hier also von \mathfrak{N} unabhängig. Die Energie ist damit

$$E^{\mathfrak{N}}(\mathfrak{R}) = \bar{E}_{\mathfrak{R}} - \hbar \sum_{\mathbf{l}\lambda} \omega_{\mathbf{l}}^{\lambda} |\alpha_{\mathbf{l}}^{\lambda}|^2 + \hbar \sum_{\mathbf{l}\lambda} \omega_{\mathbf{l}}^{\lambda} n_{\mathbf{l}}^{\lambda}. \quad (2.33)$$

Also tritt zur Energie des Excitons und des Schallfeldes eine kleine Energieabsenkung $-\hbar \sum_{\mathbf{l}\lambda} \omega_{\mathbf{l}}^{\lambda} |\alpha_{\mathbf{l}}^{\lambda}|^2$ hinzu.

§ 3. Excitonenerzeugung im Kristall durch Licht

a) Der Kristall ist in einem Eigenzustand von H

Die optische Anregung der Excitonen beschreiben wir mit dem Wechselwirkungsoperator der Elektronen für Lichtabsorption und Emission

$$W = -\frac{e}{mc} \sum_{i=1}^{2N} (\mathfrak{V}_i, \mathbf{p}_i).$$

Das Glied mit \mathfrak{V}^2 liefert Übergänge für zwei Lichtquanten auf einmal und ist hier fortgelassen worden. Schreiben wir das Vektorpotential

$$\mathfrak{V} = \sum_{\mathbf{w}\tau} c \int \frac{2\pi\hbar}{V\omega c} \dot{s}_{\mathbf{w}}^{\tau} (d_{\mathbf{w}}^{\tau} e^{i\mathbf{w}\mathbf{r}} + d_{\mathbf{w}}^{\tau+} e^{-i\mathbf{w}\mathbf{r}})$$

mit dem Wellenvektor \mathfrak{w} , $w = |\mathfrak{w}|$, dem Einheitsvektor $\hat{\mathfrak{w}}$ in Polarisationsrichtung (zwei linear unabhängige Möglichkeiten τ , $\perp \mathfrak{w}$) und den Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren $d_{\mathfrak{w}}^{\tau+}$ und $d_{\mathfrak{w}}^{\tau}$ der Lichtquanten, so wird W zu

$$W = \sum_{\mathfrak{w} \tau} W_{\mathfrak{w}}^{\tau} = - \frac{e}{mc} \sum_{\mathfrak{w} \tau} D_{\mathfrak{w}} (\hat{\mathfrak{w}} \cdot \mathfrak{p}_i) (d_{\mathfrak{w}}^{\tau} e^{i \mathfrak{w} \cdot \mathfrak{r}_i} + d_{\mathfrak{w}}^{\tau+} e^{-i \mathfrak{w} \cdot \mathfrak{r}_i}) \quad (3.1)$$

mit

$$D_{\mathfrak{w}} = \sqrt{\frac{2\pi c^2 \hbar}{V w c}}.$$

Der Hamilton-Operator des freien Lichtfeldes ist wie üblich

$$H_L = \hbar c \sum_{\mathfrak{w} \tau} w d_{\mathfrak{w}}^{\tau+} d_{\mathfrak{w}}^{\tau}. \quad (3.2)$$

Daher ist unser ganzes System aus Kristall und Lichtfeld jetzt in dem Operator

$$H_{\text{total}} = H + H_L + W \quad (3.3)$$

enthalten.

Um die Lebensdauer eines Lichtquants im Kristall zu berechnen, bestimmen wir die Matrixelemente für den Übergang vom Kristall ohne Exciton zu einem Zustand mit Exciton, wobei ein Lichtquant absorbiert wird. Dabei kann sich obendrein noch das Schallfeld verändern.

Der Ausgangszustand ist

$$\mathfrak{N} \Psi \cdot A_{\mathfrak{M}}, \quad (3.4)$$

wobei

$$\mathfrak{N} \Psi = A_0 \cdot \beta^{\mathfrak{N}+} \Phi^0 \quad (3.5)$$

der Kristallzustand ist, bestehend aus dem Elektronengrundzustand A_0 und dem mit $\mathfrak{N} = \{n_i^2\}$ besetzten Schallfeld; und

$$A_{\mathfrak{M}} = A(\dots, m_{\mathfrak{w}}^{\tau}, \dots) \quad (3.6)$$

der Zustand des Lichtfeldes, charakterisiert durch die Besetzungszahlen $\mathfrak{M} = \{m_{\mathfrak{w}}^{\tau}\}$ der Lichtquanten. $A_{\mathfrak{M}}$ ist Eigenfunktion zu H_L

$$H_L A_{\mathfrak{M}} = \hbar c \sum_{\mathfrak{w} \tau} w m_{\mathfrak{w}}^{\tau} A_{\mathfrak{M}}. \quad (3.7)$$

Wir berechnen das Übergangselement zum Zustand

$$\mathfrak{N}' \Psi_{\mathfrak{R}} \cdot A_{\mathfrak{M}-1_{\mathfrak{w}}^{\tau}} \quad (3.8)$$

in dem das Schallfeld durch \mathfrak{N}' beschrieben wird, ein Exciton mit dem Wellenvektor \mathfrak{R} vorhanden und ein Lichtquant (\mathfrak{w} , τ) vernichtet worden ist. Nur solche Übergänge kommen in 1. Näherung vor, weil W in d und d^+ linear ist.

Dabei sollen die α_i^λ diejenigen sein, die zum Schallfeld \mathfrak{N} die minimale Energie für das Exciton liefern. Weil wir später nur mit solchen \mathfrak{N}' zu tun haben, die nur wenig von \mathfrak{N} abweichen, ist die Excitonenfunktion ${}^{\mathfrak{N}'}\Psi_{\mathfrak{R}}$ mit diesen α_i^λ trotzdem gut gewählt. Wir haben aber bei dieser Festsetzung über die α_i^λ die Garantie, Übergänge in einem orthogonalen Funktionensystem zu berechnen.

Wir bezeichnen das Übergangselement mit

$${}^{\mathfrak{N}'}S_{\mathfrak{w}}^{\mathfrak{R}} = ({}^{\mathfrak{N}'}\Psi_{\mathfrak{R}} A_{\mathfrak{w}-1_{\mathfrak{w}}}, W {}^{\mathfrak{N}'}\Psi A_{\mathfrak{m}}). \quad (3.9)$$

Nach dem Anhang ergibt sich für ${}^{\mathfrak{N}'}S_{\mathfrak{w}}^{\mathfrak{R}}$ in der Dipolnäherung, d.h. unter Vernachlässigung des Impulses \mathfrak{w} des Lichtquants:

$$\left. \begin{aligned} {}^{\mathfrak{N}'}S_{\mathfrak{w}}^{\mathfrak{R}} = & \sqrt{m_{\mathfrak{w}}^{\tau}} \cdot e^{-\frac{1}{2} \sum_{\mathfrak{k}\lambda} |\alpha_{\mathfrak{k}}^{\lambda}|^2} \cdot L \cdot e^{-\sum_{\mathfrak{k}\lambda}^{(6)} |\alpha_{\mathfrak{k}}^{\lambda}|^2} n_{\mathfrak{k}}^{\lambda} \cdot \delta_{\mathfrak{R} + \sum_{\mathfrak{k}\lambda} (n_{\mathfrak{k}}^{\lambda'} - n_{\mathfrak{k}}^{\lambda}), 0} \times \\ & \times \prod_{\mathfrak{k}\lambda}^{(\mathfrak{N})} (\alpha_{\mathfrak{k}}^{\lambda'}) n_{\mathfrak{k}}^{\lambda'} - n_{\mathfrak{k}}^{\lambda'} \cdot F(n_{\mathfrak{k}}^{\lambda'}, n_{\mathfrak{k}}^{\lambda}) \cdot \prod_{\mathfrak{k}\lambda}^{(\mathfrak{N}')} (\alpha_{\mathfrak{k}}^{\lambda}) n_{\mathfrak{k}}^{\lambda'} - n_{\mathfrak{k}}^{\lambda} \cdot F(n_{\mathfrak{k}}^{\lambda}, n_{\mathfrak{k}}^{\lambda'}) \end{aligned} \right\} \quad (3.10)$$

mit

$$L = \sum_{\mathfrak{k}, \mathfrak{i}} U_{\mathfrak{R}}^*(\mathfrak{i}) \left(A_{\frac{\mathfrak{k}}{2}, -\frac{\mathfrak{k}}{2}}^{\sigma} \left(\bar{\mathfrak{s}}_{\mathfrak{w}}^{\tau}, \mathfrak{r}_i \right) A_0 \right) \left(-\frac{ie E_{\mathfrak{N}}^{\mathfrak{N}'}(\mathfrak{R})}{c\hbar} D_{\mathfrak{w}} \right).$$

Dabei bedeuten \mathfrak{G} , $\bar{\mathfrak{N}}$ und $\bar{\mathfrak{N}}'$ folgende Mengen von Paaren (\mathfrak{k}, λ) .

\mathfrak{G} umfaßt alle die (\mathfrak{k}, λ) , für die $n_{\mathfrak{k}}^{\lambda} = n_{\mathfrak{k}}^{\lambda'}$ gilt,

$\bar{\mathfrak{N}}$ umfaßt alle die (\mathfrak{k}, λ) , für die $n_{\mathfrak{k}}^{\lambda} > n_{\mathfrak{k}}^{\lambda'}$ gilt und

$\bar{\mathfrak{N}}'$ umfaßt alle die (\mathfrak{k}, λ) , für die $n_{\mathfrak{k}}^{\lambda} < n_{\mathfrak{k}}^{\lambda'}$ gilt.

Außerdem ist

$$F(n'; n) = \sqrt{\frac{n!}{(n')^3}} \quad (3.11)$$

und

$$E_{\mathfrak{N}}^{\mathfrak{N}'}(\mathfrak{R}) = E^{\mathfrak{N}'}(\mathfrak{R}) - \hbar \sum_{\mathfrak{k}\lambda}^{(\mathfrak{N})} \omega_{\mathfrak{k}}^{\lambda} n_{\mathfrak{k}}^{\lambda}. \quad (3.12)$$

Das Matrixelement in L läßt sich umformen:

$$\sum_{\mathfrak{i}} \left(A_{\frac{\mathfrak{k}}{2}, -\frac{\mathfrak{k}}{2}}^{\sigma} \left(\bar{\mathfrak{s}}_{\mathfrak{w}}^{\tau}, \mathfrak{r}_i \right) A_0 \right) = \sqrt{2} \left(\bar{\varphi}_{-\frac{\mathfrak{k}}{2}}(\mathfrak{r}), \mathfrak{r} \varphi_{\frac{\mathfrak{k}}{2}}(\mathfrak{r}) \right) \delta_{0,s}. \quad (3.13)$$

Daraus folgt die Berechtigung der Dipolnäherung: \mathfrak{w} kann immer dann vernachlässigt werden, wenn die Funktionen φ , $\bar{\varphi}$ und U auf atomare Dimensionen konzentriert sind (klein gegen die Lichtwellenlänge).

Aus dem Matrixelement ${}^{\mathfrak{N}'}S_{\mathfrak{w}}^{\mathfrak{R}}$ folgt für die Übergangswahrscheinlichkeit

$${}^{\mathfrak{N}'}W_{\mathfrak{w}}^{\mathfrak{R}} = \sum_{\tau} \frac{2\pi}{\hbar} |{}^{\mathfrak{N}'}S_{\mathfrak{w}}^{\mathfrak{R}}|^2 \cdot \delta(E_{\mathfrak{N}}^{\mathfrak{N}'}(\mathfrak{k}) - E_{\mathfrak{w}}). \quad (3.14)$$

Die δ -Funktion enthält $E_w = \hbar \omega c$, die Energie des Lichtquants. Weil unpolarisiertes Licht einfallen soll, wird über τ summiert. In (3.14) setzen wir (3.10) ein. Statt m_w^τ , der Zahl der Lichtquanten (w, τ) im Volumen V , führen wir den Teilchenstrom J_w^τ ein

$$m_w^\tau = \frac{V}{c} J_w^\tau. \quad (3.15)$$

Mit den Abkürzungen

$$B = \sum_{\tau} \frac{1}{N} \left| \sum_{\mathfrak{t}} U_{\mathfrak{R}}^*(t) \left(\bar{\varphi}_{-\frac{t}{2}}(r), (r \hat{e}_w^\tau) \varphi_{\frac{t}{2}}(r) \right) \right|^2 \quad (3.16)$$

und

$$G_{\mathfrak{R}}^{\mathfrak{R}'} = e^{-\sum_{\mathfrak{t}} |\alpha_{\mathfrak{t}}^\lambda|^2 - 2 \sum_{\mathfrak{t}}^{(6)} |\alpha_{\mathfrak{t}}^\lambda|^2 n_{\mathfrak{t}}^\lambda} \cdot \prod_{\lambda \mathfrak{t}}^{(\mathfrak{R})} |\alpha_{\mathfrak{t}}^\lambda|^2 F^2(n_{\mathfrak{t}}^{\lambda'}, n_{\mathfrak{t}}^\lambda) \times \left. \begin{aligned} & \times \prod_{\mathfrak{t}}^{(\mathfrak{R}')} |\alpha_{\mathfrak{t}}^{\lambda'}|^2 F(n_{\mathfrak{t}}^{\lambda'}, n_{\mathfrak{t}}^{\lambda'}) \end{aligned} \right\} \quad (3.17)$$

wird aus (2.14)

$$\left. \begin{aligned} \mathfrak{R}' W_w^{\mathfrak{R}} &= 8\pi^2 \cdot \frac{e^2}{\hbar c} \cdot \frac{V}{V_z} \cdot J_w^\tau B G_{\mathfrak{R}}^{\mathfrak{R}'} \cdot E_{\mathfrak{R}}^{\mathfrak{R}'}(\mathfrak{R}) \times \\ & \times \delta_{\mathfrak{R} + \sum_{\lambda \mathfrak{t}} (n_{\mathfrak{t}}^{\lambda'} - n_{\mathfrak{t}}^\lambda), 0} \delta(E_{\mathfrak{R}'}(\mathfrak{R}) - E_w). \end{aligned} \right\} \quad (3.18)$$

Die optische Absorption wird meist an dünnen Schichten beobachtet, die polykristallin sind. Für diesen Fall können wir B noch umformen. Man kann über die verschiedenen Richtungen mitteln, die der Real- bzw. Imaginärteil von $\sum_{\mathfrak{t}} U^*(t) \times \left(\bar{\varphi}_{-\frac{t}{2}}, r \varphi_{\frac{t}{2}} \right)$ mit der Polarisationsrichtung bildet. In einem Kristalliten wählen wir zwei Polarisationsrichtungen \hat{s}^{τ_1} und \hat{s}^{τ_2} . \hat{s}^{τ_1} soll in der Ebene von w und dem Realteil liegen, natürlich $\perp w$. Der zweite Vektor \hat{s} , senkrecht auf w und \hat{s}^{τ_1} liefert dann keinen Beitrag zu L . Ebenso verhält sich \hat{s}^{τ_2} zum Imaginärteil. Nennen wir nun ϑ_1 und ϑ_2 die beiden Winkel zwischen Real- und Imaginärteil und w , so erhalten wir für einen Kristalliten

$$B = \frac{1}{N} \sum_{\mathfrak{t}} U_{\mathfrak{R}}^*(t) \left(\bar{\varphi}_{-\frac{t}{2}}, r \varphi_{\frac{t}{2}} \right) \Big|^2 (\sin^2 \vartheta_1 + \sin^2 \vartheta_2). \quad (3.19)$$

Die Mittelung über die verschiedenen Kristallitorientierungen in der dünnen Schicht führt zu

$$B = \frac{1}{N} \sum_{\mathfrak{t}} U_{\mathfrak{R}}^*(t) \left(\bar{\varphi}_{-\frac{t}{2}}, r \varphi_{\frac{t}{2}} \right) \Big|^2 \cdot \frac{2}{3}. \quad (3.20)$$

Für das einfallende Licht sollen keine Phasenbeziehungen bestehen zwischen den verschiedenen Quanten, so daß wir keine Interferenzterme berücksichtigen müssen und einfach Intensitäten addieren können, wenn wir die Gesamtabsorption aus der Formel (3.18) berechnen. Das einfallende Licht soll konstanten Teilchenstrom im ganzen vorkommenden Spektrum haben: $J_w^\tau = J$.

Summieren wir über alle möglichen entstehenden \mathfrak{N}' und über die einfallenden \mathfrak{w}^* , so haben wir die Übergangswahrscheinlichkeit für das Entstehen von Excitonen durch Licht in einem Kristall mit dem Schwingungszustand \mathfrak{N}

$${}_N W = P \cdot \sum_{\mathfrak{N}'} (\omega_{\mathfrak{N}'}^{\mathfrak{N}}(\mathfrak{N}))^3 G_{\mathfrak{N}'}^{\mathfrak{N}} \delta_{\mathfrak{N} + \sum_{\lambda \mp} \mathfrak{r} (n_{\lambda \mp}^{\lambda'} - n_{\lambda \mp}^{\lambda}), 0} \quad (3.21)$$

mit den Abkürzungen $\omega_{\mathfrak{N}'}^{\mathfrak{N}}(\mathfrak{N}) = \frac{1}{\hbar} E_{\mathfrak{N}'}^{\mathfrak{N}}(\mathfrak{N})$ und

$$P = 4 \cdot \frac{e^2}{\hbar c} \cdot V \cdot \frac{V}{V_z} \cdot B \cdot \frac{1}{c^3} J. \quad (3.22)$$

Im gesamten Spektralbereich, in dem Absorption erfolgen kann, fallen also J Quanten/Fläche \cdot Zeit in den Kristall ein für jedes \mathfrak{w} , das mit dem Periodizitätsvolumen verträglich ist. Damit ist $1/{}_N W$ die Zeit, in der im Mittel ein Exciton entsteht.

(3.21) und (3.22) unterscheiden sich von der Übergangswahrscheinlichkeit für die Lichtabsorption eines Atoms in drei Punkten. Durch den Faktor 2, der aus Gl. (2.13) stammt, durch die Summe über \mathfrak{N}' wegen der verschiedenen Möglichkeiten, in denen das Schallfeld verändert zurückbleiben kann, und durch die Volumabhängigkeit $V \cdot \frac{V}{V_z} = V \cdot N$. Die Erzeugung der Excitonen ist proportional dem Volumen V , weil die Zahl der reaktionsfähigen Lichtquanten mit V wächst. Sie ist außerdem proportional $N = \frac{V}{V_z}$, weil mit der Anzahl der Zellen die Zahl der reaktionsfähigen Elektronen wächst.

b) Der Zustand des Kristalles ist ein thermisches Gemisch

Damit wir die Excitonenerzeugung durch Licht in einem Kristall mit dem Ausgangszustand (3.4) beschreiben können, setzen wir voraus, daß die Temperatur zwar das Schallfeld anregen kann, die Elektronen aber im Grundzustand läßt, d. h. $E^{\mathfrak{N}}(\mathfrak{N}) \gg \hbar \omega_{\mathfrak{L}}^{\mathfrak{L}}, kT$. Das bedeutet eine Einschränkung höchstens für einige Halbleiter.

Wir schreiben die Formeln für zwei Fälle auf: 1. Für beliebiges Excitonenspektrum; diese Formeln lassen sich nur wenig vereinfachen. 2. Für ein Modell mit unbeweglichen Excitonen, d. h. verschwindender Excitonenbandbreite, und einheitlicher Schallfrequenz $\bar{\omega}$, d. h. überwiegender Wechselwirkung der Elektronen mit einem optischen Zweig der Gitterschwingungen.

* Bei Summation über \mathfrak{w} muß die δ -Funktion $\delta(E_{\mathfrak{N}'}^{\mathfrak{N}}(\mathfrak{N}) - E_{\mathfrak{w}})$ durch ein Kronecker-Symbol $\delta_{E_{\mathfrak{N}'}^{\mathfrak{N}}(\mathfrak{N}), E_{\mathfrak{w}}}$ ausgedrückt werden:

$$\delta(E_{\mathfrak{N}'}^{\mathfrak{N}}(\mathfrak{N}) - E_{\mathfrak{w}}) = \delta_{E_{\mathfrak{N}'}^{\mathfrak{N}}(\mathfrak{N}), E_{\mathfrak{w}}} \cdot \frac{V}{(2\pi)^3} \cdot \frac{E_{\mathfrak{w}}^2}{(\hbar c)^3}.$$

Zunächst die Absorption von Licht am absoluten Nullpunkt. Hier lautet die Übergangswahrscheinlichkeit:

$${}_0W = P \cdot \sum_{\mathfrak{N}'} (\omega_0^{\mathfrak{N}'}(\mathfrak{R}))^3 \cdot G_0^{\mathfrak{N}'} \cdot \delta_{\mathfrak{R} + \sum_{\mathfrak{f}\lambda} \mathfrak{f} n_{\mathfrak{f}}^{\lambda'}, 0}. \quad (3.23)$$

Wir teilen ${}_0W$ auf

$${}_0W = \sum_{i=0}^{\infty} {}_0W(i). \quad (3.24)$$

${}_0W(i)$ ist dabei die Übergangswahrscheinlichkeit für alle die Prozesse, bei denen gerade i Schallquanten erzeugt werden. In ${}_0W(i)$ stecken also die Anteile, die durch $\mathfrak{N}' = \mathfrak{N}(i)$ bewirkt werden, wo $\mathfrak{N}(i)$ alle die Schallfeldbesetzungen mit gerade i vorhandenen Quanten bedeuten.

$${}_0W(i) = P \cdot \sum_{\mathfrak{N}(i)} (\omega_0^{\mathfrak{N}(i)}(\mathfrak{R}))^3 \cdot G_0^{\mathfrak{N}(i)} \delta_{\mathfrak{R} + \sum_{\mathfrak{f}\lambda} \mathfrak{f} n_{\mathfrak{f}}^{\lambda}, 0}. \quad (3.25)$$

Wir nennen die i erzeugten Quanten $(\mathfrak{f}_\nu, \lambda_\nu)$ ($\nu = 1, \dots, i$). Immer wenn einige (etwa ζ) dieser Quanten gleich sind, tritt in $G_0^{\mathfrak{N}(i)}$ der Faktor $F^2(0, \zeta)$ auf. Solange aber die Zahl i der erzeugten Quanten klein ist im Vergleich zur Zahl $N \cdot L$ der verschiedenen möglichen Quanten im Kristall, ist stets die Anzahl der Möglichkeiten, voneinander verschiedene Quanten zu erzeugen, von höherer Potenz in N als die Anzahl der Möglichkeiten, Kombinationen von Quanten zu erzeugen, unter denen sich mindestens zwei gleiche befinden. Darum kann man unabhängig über die $(\mathfrak{f}_\nu, \lambda_\nu)$ summieren. Wir erhalten also für i erzeugte Quanten ($i \ll N$)

$$\begin{aligned} \mathfrak{R} &= - \sum_{\nu=1}^i \mathfrak{f}_\nu \quad (\text{reduziert auf die 1. Brillouin-Zone}) \\ G_0^{\mathfrak{N}(i)} &= e^{-\sum_{\mathfrak{f}\lambda} |\alpha_{\mathfrak{f}}^{\lambda}|^2} \cdot \prod_{\nu=1}^i |\alpha_{\mathfrak{f}_\nu}^{\lambda_\nu}|^2. \end{aligned} \quad (3.26)$$

Im vereinfachten Modell unbeweglicher Excitonen wird mit

$$\begin{aligned} \omega_0^i &= \frac{1}{\hbar} E_0^{\mathfrak{N}(i)} = \frac{1}{\hbar} \bar{E} + i \bar{\omega} \\ {}_0W(i) &= P \cdot e^{-\sum_{\mathfrak{f}\lambda} |\alpha_{\mathfrak{f}}^{\lambda}|^2} (\omega_0^i)^3 \cdot \left(\sum_{\mathfrak{f}\lambda} |\alpha_{\mathfrak{f}}^{\lambda}|^2 \right)^i. \end{aligned} \quad (3.27)$$

Hier bezeichnen wir

$$\sum_{\mathfrak{f}\lambda} |\alpha_{\mathfrak{f}}^{\lambda}|^2 = Q. \quad (3.28)$$

Für $Q < 1$ wird der Anteil der Absorption mit steigender Schallquantenerzeugung in geometrischer Folge kleiner (Fig. 1 a).

Wenn $Q > 1$ ist, so ist die Zahl der Prozesse mit mehr Schallquanten größer als die mit wenigen und wächst mit i zunächst unbegrenzt

(Fig. 1 b). Dieses Wachstum nimmt erst ein Ende durch die oben fortgelassenen Faktoren $F^2(n_i^{\lambda'}, n_i^{\lambda})$, wenn i über $\frac{1}{2} \cdot 3NL$ hinaus ansteigt [s. Ableitung von (3.26)].

Es ist aber klar, daß die Erzeugung von vielen Schallquanten bei der Lichtabsorption in unserem Modell nicht beschrieben werden kann, weil wir ein isoliertes Excitonenband behandeln. Wenn die umgesetzte Schallenergie vergleichbar wird mit dem Abstand der Excitonenbänder, müssen die verschiedenen Excitonenbänder berücksichtigt werden. Das

trifft für $Q > 1$ notwendig ein. Daher müssen wir diesen Fall hier ausschließen. Unser Modell ist also nur brauchbar, wenn

$$Q = \sum_{t\lambda} |\alpha_t^{\lambda}|^2 < 1. \quad (3.29)$$

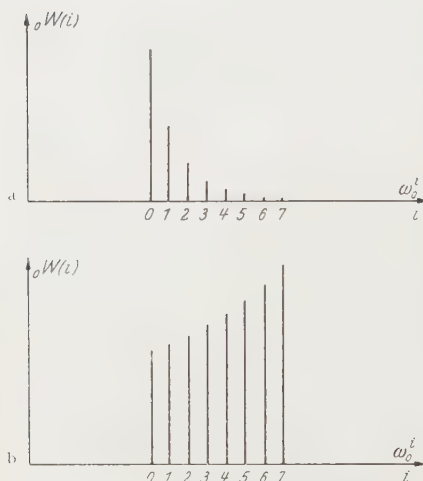


Fig. 1 a u. b. Die Übergangswahrscheinlichkeiten
a für $Q = \frac{1}{2} < 1$, b für $Q > 1$

Die Bedingung (3.29) haben wir für das vereinfachte Modell abgeleitet. Sie gilt aber natürlich auch im allgemeinen Fall, weil $\omega_0^{y(i)}(\mathfrak{R})$ nur langsam veränderlich für wachsendes i ist.

Große Werte von Q sind in unserem Modell unsinnig aus zwei Gründen: Die Kopplung sollte die Funktion $U(m-n)$ unbeeinflusst lassen. Das trifft nur für kleine Q zu. Dann aber sehen wir aus (3.26),

daß für $Q > 1$ unser Excitonenwellenfunktions-System (3.23) unbrauchbar wird. Es ist ja nur für ein festes System der α_t^{λ} orthonormiert. Wir wählen ja als α_t^{λ} diejenigen, die zu dem Schallfeld \mathfrak{R} des Kristallausgangszustandes gehören. Für stark davon abweichende Schallfelder würden diese α_t^{λ} schlecht gewählt sein.

Nur die Linie für $i=0$ ist im allgemeinen Fall scharf. Die Übergänge $i=1$ haben die Breite etwa des Excitonenbandes. Mit steigendem i wird die Breite nur langsam größer* weil $\sum_{\nu=1}^i \hbar \omega_{t\nu}^{\lambda'}$ für beliebige Auswahlen ($\nu=1, \dots, i$) immer noch klein gegen die Excitonenenergie bleibt.

Jetzt diskutieren wir die Lichtabsorption, ausgehend von einem Zustand $A_0 \Phi^{\mathfrak{R}}$ mit beliebigem \mathfrak{R} . Die Übergangswahrscheinlichkeit

* Die α_t^{λ} werden groß sein, wenn $2\pi/\mathfrak{k}$ etwa gleich dem Excitondurchmesser ist. Für $i=1$ gibt also die Form der Absorptionslinie ungefähr die Variation von $|\alpha_t^{\lambda}|^2$ mit \mathfrak{k} wieder, allerdings verwischt durch die verschiedenen Zweige λ .

lautet nach (3.21)

$${}_R W = P \cdot \sum_{\mathfrak{R}'} (\omega_{\mathfrak{R}}^{\mathfrak{R}'}(\mathfrak{R}))^3 \cdot G_{\mathfrak{R}}^{\mathfrak{R}'} \delta_{\mathfrak{R} + \sum_{\mathfrak{f}, \lambda} (\mathfrak{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda'} - \mathfrak{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda}), 0}.$$

Wieder teilen wir ${}_R W$ auf:

$${}_R W = \sum_{i=-\infty}^{+\infty} {}_R W(i). \quad (3.30)$$

i kann hier auch negative Werte annehmen, weil jetzt auch Schallquanten vernichtet werden können. Die Zahl der erzeugten Quanten sei ξ , die der vernichteten η , dann ist

$$i = \xi - \eta. \quad (3.31)$$

Es ist ${}_R W(i) = 0$ für alle $-i > \sum_{\mathfrak{f}, \lambda} \mathfrak{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda}$, weil nicht mehr Quanten vernichtet werden können als vorhanden sind.

Bezeichnen wir mit ${}_R W(\xi, \eta)$ die Übergangswahrscheinlichkeit für Lichtabsorption, wobei genau ξ Quanten erzeugt und η Quanten vernichtet werden, so ist

$${}_R W(i) = \sum_{\xi - \eta = i} {}_R W(\xi, \eta). \quad (3.32)$$

Die einzelnen Größen ${}_R W(\xi, \eta)$ können wir leicht angeben. In ${}_R W(\xi, \eta)$ stecken Übergänge von \mathfrak{R} zu solchen \mathfrak{R}' , die ξ bestimmte Quanten mehr und η bestimmte Quanten weniger enthalten als \mathfrak{R} . Wir bezeichnen diese \mathfrak{R}' mit $\mathfrak{R}(\xi|\eta)$. In dieser Benennung ist $\mathfrak{R}(i) = 0(i|0)$.

Damit gilt

$${}_R W(\xi, \eta) = P \cdot \sum_{\mathfrak{R}(\xi|\eta)} (\omega_{\mathfrak{R}}^{\mathfrak{R}(\xi|\eta)}(\mathfrak{R}))^3 \cdot G_{\mathfrak{R}}^{\mathfrak{R}(\xi|\eta)} \delta_{\mathfrak{R} + \sum_{\mathfrak{f}, \lambda} (\mathfrak{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda'} - \mathfrak{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda}), 0}, \quad (3.33)$$

$$\mathfrak{R} = - \sum_{\mathfrak{f}, \lambda} \mathfrak{f} (\mathfrak{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda'} - \mathfrak{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda}), \quad (\text{reduziert auf die 1. Brillouinzone}) \quad (3.34)$$

und nach (3.17)

$$G_{\mathfrak{R}}^{\mathfrak{R}(\xi|\eta)} = e^{-\sum_{\mathfrak{f}, \lambda} |\alpha_{\mathfrak{f}}^{\lambda}|^2 - 2 \sum_{\mathfrak{f}, \lambda}^{(\mathfrak{G})} |\alpha_{\mathfrak{f}}^{\lambda}|^2 \mathfrak{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda}} \cdot \prod_{\mathfrak{f}, \lambda}^{(\xi)} |\alpha_{\mathfrak{f}}^{\lambda}|^2 F^2(\mathfrak{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda} - \mathfrak{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda'}) \times \left\{ \begin{array}{l} F^2(\mathfrak{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda'}, \mathfrak{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda}) \times \\ \times \prod_{\mathfrak{f}, \lambda}^{(\eta)} |\alpha_{\mathfrak{f}}^{\lambda}|^2 F^2(\mathfrak{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda'} - \mathfrak{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda}) \end{array} \right\} \quad (3.35)$$

Die Summe über \mathfrak{G} im Exponenten können wir wie oben, solange ξ und η beide klein gegen $N \cdot L$ sind, durch eine Summe über \mathfrak{R} ersetzen.

Benennen wir die erzeugten und vernichteten Quanten

$$(\mathfrak{f}_{\sigma}, \lambda_{\sigma}), \quad \sigma = 1, \dots, \xi \quad \text{und} \quad (\mathfrak{f}_{\varrho}, \lambda_{\varrho}), \quad \varrho = 1, \dots, \eta,$$

so erhalten wir mit $R = \sum |\alpha_t^\lambda|^2 n_t^\lambda$

$$\Re W(\xi, \eta) = P \cdot e^{-Q-2R} \cdot \sum_{\Re(\xi, \eta)} \left[\omega_{\Re}^{(\xi, \eta)} \left(- \sum_{t, \lambda} f(n_t^{\lambda'} - n_t^\lambda) \right) \right]^3 \times \left\{ \right. \\ \left. \times \prod_{\sigma=1}^{\xi} |\alpha_{t\sigma}^{\lambda\sigma}|^2 \cdot F^2(n_{t\sigma}^{\lambda\sigma}, n_{t\sigma}^{\lambda'\sigma}) \cdot \prod_{\varrho=1}^{\eta} |\alpha_{t\varrho}^{\lambda\varrho}|^2 \cdot F^2(n_{t\varrho}^{\lambda\varrho}, n_{t\varrho}^{\lambda'\varrho}) \right\} \quad (3.36)$$

mit $F^2(n', n) = n!/(n')^3$. Wir summieren wie oben unabhängig. Daher kommt bei erzeugten Quanten nur $n' = n + 1$ und bei vernichteten Quanten nur $n' = n - 1$ vor und wir können

$$\tilde{F}(n) = F^2(n-1, n) = \frac{n!}{(n-1)!^3} = \frac{n}{(n-1)!^2} \quad (3.37)$$

und

$$\tilde{Q} = \sum_{t, \lambda} |\alpha_t^\lambda|^2 \tilde{F}(n_t^\lambda + 1); \quad \tilde{R} = \sum_{t, \lambda} |\alpha_t^\lambda|^2 \tilde{F}(n_t^\lambda) \quad (3.38)$$

eingeführen.

Daher wird im vereinfachten Modell

$$\Re W(\xi, \eta) = P \cdot e^{-Q-2R} \cdot (\omega_{\Re}^{(\xi, \eta)})^3 \cdot \tilde{Q}^\xi \cdot \tilde{R}^\eta. \quad (3.39)$$

Die Definition von $\tilde{F}(n)$ ergibt leicht folgende Tabelle:

n	0	1	2	3	4
\tilde{F}	0	1	2	$\frac{3}{4}$	$\frac{1}{9}$

Für $\Re W(i)$ gilt: Im allgemeinen Fall

$$\Re W(i) = P \cdot e^{-Q-2R} \cdot \sum_{\substack{\Re(\xi, \eta) \\ \xi - \eta = i}} \left[\omega_{\Re}^{(\xi, \eta)} \left(- \sum_{t, \lambda} f(n_t^{\lambda'} - n_t^\lambda) \right) \right]^3 \times \left\{ \right. \\ \left. \times \prod_{\sigma=1}^{\xi} |\alpha_{t\sigma}^{\lambda\sigma}|^2 \cdot F^2(n_{t\sigma}^{\lambda\sigma}, n_{t\sigma}^{\lambda'\sigma}) \cdot \prod_{\varrho=1}^{\eta} |\alpha_{t\varrho}^{\lambda\varrho}|^2 \cdot F^2(n_{t\varrho}^{\lambda\varrho}, n_{t\varrho}^{\lambda'\varrho}) \right\} \quad (3.40)$$

und beim Modell*

$$\Re W(i) = P \cdot e^{-Q-2R} \cdot \omega(\Re; i)^3 \cdot \frac{1}{1 - \tilde{Q}\tilde{R}} \cdot \left\{ \begin{array}{ll} \tilde{Q}^i & \text{für } i > 0 \\ 1 & \text{für } i = 0 \\ \tilde{R}^{-i} & \text{für } i < 0. \end{array} \right\} \quad (3.41)$$

Wir erkennen, daß mit wachsenden n_t^λ zunächst \tilde{Q} und \tilde{R} wegen \tilde{F} anwachsen, dann aber rasch sehr klein werden.

* Bei Formel (3.26) haben wir diskutiert, daß die Einführung von Q nur einen Sinn hat für $\xi \ll N \cdot L$. Ebenso hat es nur Sinn, \tilde{R} einzuführen, wenn $\eta \ll \sum_{t, \lambda} n_t^\lambda$.

Hier von einer konvergierenden geometrischen Reihe zu sprechen, ist natürlich auch nur sinnvoll, wenn schon von einem $\alpha \ll \sum n_t^\lambda$ ab die Glieder $(\tilde{Q}\tilde{R})^\alpha$ der Reihe vernachlässigbar klein sind, denn Glieder mit $\alpha \geq \sum n_t^\lambda$ kommen in Wirklichkeit ja gar nicht vor.

Die Formeln für beliebige Besetzungszahlen gelten nur, wenn die schärfere Bedingung $\tilde{Q} < 1$ für alle \mathfrak{N} an die Stelle von (3.29) tritt.

Mit den bisher abgeleiteten Formeln können wir die Lichtabsorption im Kristall bei einer Temperatur T behandeln. Im Kristall ist dann ein Schallfeld angeregt, bei dem die einzelnen Oszillatoren die mittlere Besetzungszahl

$$\overline{n_{\mathfrak{f}}^{\lambda}} = \frac{1}{e^{\hbar \omega_{\mathfrak{f}}^{\lambda} / kT} - 1} \quad (3.42)$$

haben und keine Phasenbeziehungen zwischen den Oszillatoren bestehen) Wir nennen $\overline{\mathfrak{N}}$ die Zusammenfassung der mittleren Besetzungszahlen $\{\overline{n_{\mathfrak{f}}^{\lambda}}\}$. Weil keine Phasenbeziehungen bestehen, können wir die Übergangswahrscheinlichkeit zwischen einzelnen Zuständen selbst thermisch mitteln. Sie ist eine Funktion $f(n_{\mathfrak{f}}^{\lambda})$ der Besetzungszahlen $n_{\mathfrak{f}}^{\lambda}$. Mit $\beta = 1/kT$ (k = Boltzmann-Konstante) bedeutet thermische Mittelung

$$\overline{f(n_{\mathfrak{f}}^{\lambda})}^T = \frac{\sum_{(\mathfrak{N})} e^{-\beta \hbar \sum_{\mathfrak{f}\lambda} \omega_{\mathfrak{f}}^{\lambda} n_{\mathfrak{f}}^{\lambda}} f(n_{\mathfrak{f}}^{\lambda})}{\sum_{(\mathfrak{N})} e^{-\beta \hbar \sum_{\mathfrak{f}\lambda} \omega_{\mathfrak{f}}^{\lambda} n_{\mathfrak{f}}^{\lambda}}} \quad (3.43)$$

Es ist über alle möglichen $\mathfrak{N} = \{n_{\mathfrak{f}}^{\lambda}\}$ zu summieren. Der Nenner in (3.43) kann durch Addition sämtlicher geometrischer Reihen in der Gestalt

$$\sum_{\mathfrak{N}} e^{-\beta \hbar \sum_{\mathfrak{f}\lambda} \omega_{\mathfrak{f}}^{\lambda} n_{\mathfrak{f}}^{\lambda}} = \prod_{\mathfrak{f}\lambda} \left(1 - e^{-\beta \hbar \omega_{\mathfrak{f}}^{\lambda}}\right)^{-1} \quad (3.44)$$

geschrieben werden. Die Übergangswahrscheinlichkeit als Funktion der Temperatur ist damit

$$W(T) = \overline{\mathfrak{N}}^T W = P \cdot \overline{\sum_{\mathfrak{N}'} (\omega_{\mathfrak{N}'}^{\mathfrak{N}})^3 G_{\mathfrak{N}'}^{\mathfrak{N}} \cdot \delta_{\mathfrak{N} + \sum_{\mathfrak{f}} (n_{\mathfrak{f}}^{\lambda'} - n_{\mathfrak{f}}^{\lambda}), 0}}^T \quad (3.45)$$

Das entsprechende gilt für $W(T; i) = \overline{\mathfrak{N}}^T W(i)$.

Im allgemeinen Fall lassen sich die Formeln zwar anschreiben aber schlecht vereinfachen und diskutieren. Das einfache Modell unbeweglicher Excitonen und konstanter Schallquantenenergie dagegen liefert zunächst

$$W(T, i) = P \cdot e^{-Q} \cdot (\omega(\mathfrak{N}, i))^3 \cdot \overline{\frac{e^{-2\tilde{R}}}{1 - \tilde{Q}\tilde{R}}}^T \begin{cases} \tilde{Q}^i & \text{für } i > 0 \\ 1 & \text{für } i = 0 \\ \tilde{R}^{-i} & \text{für } i < 0. \end{cases}$$

Die Energie $\hbar\omega(\mathfrak{N}; i)$ ist aber bei der Temperatur T sehr scharf gleich $\hbar\omega(\overline{\mathfrak{N}}; i)$. Wir ziehen sie deshalb aus dem Mittelwert heraus. Dann

muß der Mittelwert

$$\frac{e^{-2\tilde{R}}}{1 - \tilde{Q}\tilde{R}} \tilde{R}^x T$$

ausgerechnet werden. Würden die Besetzungszahlen n_i^2 nur die Werte 0 und 1 haben, d.h. wäre der Kristall kälter als Zimmertemperatur*, so könnte der Mittelwert leicht berechnet werden, denn dann ist $\tilde{R} = R$ und da $\frac{1}{1 - QR} = \sum_x (QR)^x$ ist, sind nur Glieder $e^{-2R} R^x$ zu berechnen.

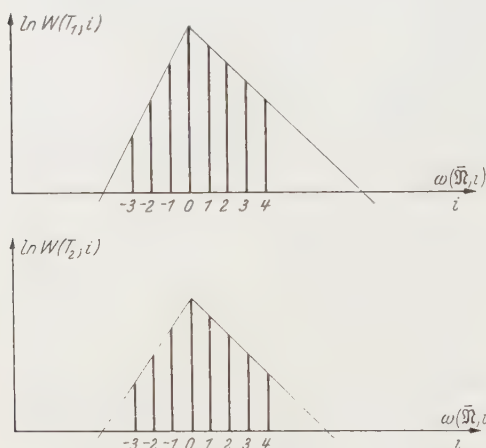


Fig. 2. $W(T; i)$ logarithmisch aufgetragen nach (3.24) für zwei Temperaturen $T_1 < T_2$

Für $W(T; i)$ haben wir damit den Ausdruck:

$$W(T; i) = P \cdot e^{-Q} \cdot \omega(\bar{R}; i)^3 \cdot \frac{e^{-2\bar{R}}}{1 - Q\bar{R}} \left\{ \begin{array}{ll} Q^i & \text{für } i > 0 \\ 1 & \text{für } i = 0 \\ \bar{R}^{-i} & \text{für } i < 0. \end{array} \right\} \quad (3.46)$$

Fig. 2 veranschaulicht die Formel (3.46) für verschiedene Temperaturen. Zu den Linien mit Intensitäten, die in geometrischer Folge abnehmen und durch Erzeugung neuer Schallquanten bei der Lichtabsorption entstehen, kommen also noch weitere Linien hinzu, die wieder geometrisch abnehmende Intensitäten haben, aber durch die Prozesse entstehen, bei denen Schallquanten vernichtet werden. Die Intensität dieser Linien wächst an mit der Anregung des Schallfeldes relativ zu den schon bestehenden Linien. Alle Linien aber werden geschwächt durch den gleichen Faktor

$$\frac{e^{-Q-2\bar{R}}}{1 - Q\bar{R}}.$$

* Für $T \sim 300^\circ \text{K}$ ist $kT \sim \hbar\bar{\omega}$, d.h. für $T \ll 300^\circ \text{K}$ ist $kT \ll \hbar\bar{\omega}$ und daher n_i^2 klein.

Wegen

$$\frac{e^{-\gamma R}}{e^{-\gamma R} R^v} = \frac{\tilde{e}^v}{\tilde{e}(-\gamma')^v} e^{-\gamma R} T$$

$$= \frac{\tilde{e}^v}{\tilde{e}(-\gamma')^v} e^{-\gamma R} T$$

und

$$\frac{e^{-\gamma R}}{e^{-\gamma R}} = e^{-\gamma \bar{R}} \quad \text{mit } \bar{R} = \bar{R}^T$$

ist einfach

$$\frac{e^{-2R}}{1 - QR} R^x = \frac{e^{-2\bar{R}}}{1 - Q\bar{R}} \bar{R}^x.$$

Im vereinfachten Modell ist

$$\bar{R} = \frac{\sum_i |\alpha_i^2|^2}{\hbar \bar{\omega} / k T - 1}.$$

Für den allgemeineren Fall beliebiger Besetzungszahlen, den wir eigentlich behandeln, schreiben wir näherungsweise

$$W(T; i) = P \cdot e^{-Q} \cdot \omega(\bar{\mathfrak{N}}; i)^3 \cdot \frac{e^{-2\bar{R}}}{1 - \bar{Q}\bar{R}} \cdot \left\{ \begin{array}{ll} \bar{Q}^i & \text{für } i > 0 \\ 1 & \text{für } i = 0 \\ \bar{R}^{-i} & \text{für } i < 0. \end{array} \right\} \quad (3.47)$$

Diese Näherung ist aber schlechter als (3.46), weil sich die Faktoren $\tilde{F}(n_{\mathfrak{f}}^{\lambda})$ nicht exakt behandeln lassen wie die $n_{\mathfrak{f}}^{\lambda}$ selbst bei der Mittelwertbildung.

Qualitativ gilt für den allgemeinen Fall beweglicher Excitonen und eines realen Schallfeldes das Gleiche, was wir an unserem Modell ablesen können. Aber die Absorption findet immer in einem Spektralbereich von der Breite des Excitonenbandes statt^{*}. Auch der Term $i=0$ hat diese Breite. Nur die Absorption, bei der überhaupt keine Quanten umgesetzt werden ($\xi=\eta=0$) geschieht bei der festen Frequenz $\omega_{\bar{\mathfrak{N}}}(0)$. Wir können sie auch im allgemeinen Fall genauer angeben. Wir nennen den Term $W(T; 0, 0)$:

$$W(T; 0, 0) = P \cdot e^{-Q} (\omega_{\bar{\mathfrak{N}}}(0))^3 e^{-2\bar{R}}, \quad (3.48)$$

$W(T; 0, 0)$ nimmt mit steigender Temperatur ab, denn

$$\bar{R} = \sum_{\mathfrak{f}\lambda} |\alpha_{\mathfrak{f}}^{\lambda}|^2 \bar{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda} = \sum_{\mathfrak{f}\lambda} \frac{|\alpha_{\mathfrak{f}}^{\lambda}|^2}{e^{\frac{\hbar\omega_{\mathfrak{f}}^{\lambda}}{kT}} - 1}.$$

Unsere Formeln beschreiben auch einen Teil der Verschiebung der Absorptionslinien mit der Temperatur. Und zwar nimmt $\omega_{\bar{\mathfrak{N}}}(0)$ im allgemeinen mit der Temperatur ab. Es ist nämlich

$$\omega_{\bar{\mathfrak{N}}}(0) = \frac{1}{\hbar} E^{\bar{\mathfrak{N}}}(0) - \sum_{\mathfrak{f}\lambda} \omega_{\mathfrak{f}}^{\lambda} \bar{n}_{\mathfrak{f}}^{\lambda}.$$

Im Grenzfall der Störungsrechnung sind die $|\alpha_{\mathfrak{f}}^{\lambda}|^2$ unabhängig von \mathfrak{N} (und T) und daher ist dann

$$\omega_{\bar{\mathfrak{N}}}(0) = \frac{1}{\hbar} \bar{E}_0 - \sum_{\mathfrak{f}\lambda} \omega_{\mathfrak{f}}^{\lambda} |\alpha_{\mathfrak{f}}^{\lambda}|^2 = \omega_0^0(0)$$

unabhängig von T . In nächster Näherung aber nimmt $E^{\bar{\mathfrak{N}}}(0)$ mit T ab und dann folgt obige Behauptung.

Ein zusätzlicher Grund für die Linienverschiebung liegt in der thermischen Ausdehnung und dem Gang der Dielektrizitätskonstanten mit der Temperatur. Beides enthält unser Modell nicht.

^{*} Vgl. Fußnote auf S. 212.

§ 4. Schluß

Zu dieser Arbeit werden experimentelle Untersuchungen an Isolatoren mit kleiner Dielektrizitätskonstante, großer Isolatorlücke und weitgehend homöopolarer Bindung benötigt z. B. an Diamant. Sie liegen noch nicht vor.

Ein gewisser vorläufiger Vergleich mehr qualitativer Art ist möglich mit den Messungen von E. F. GROSS an Kupferoxydul. Natürlich ist eigentlich die Dielektrizitätskonstante von Cu_2O zu groß ($\epsilon_0 = 6,5$), als daß unsere Vereinfachung $\alpha_i^2(m-n) = \text{const} = \alpha_i^2$ noch richtig wäre. Aber die Breite der Absorptionslinien durch Excitonen ist viel kleiner als ihr Abstand und für verschiedene Temperaturen liegen Photogra-

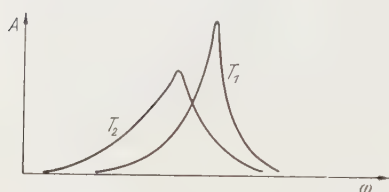


Fig. 3. Schematische Zeichnung der von Gross gemessenen Excitonenlinien von Cu_2O bei verschiedenen Temperaturen $T_1 < T_2$, T_1 dicht am absoluten Nullpunkt. Nach Gross Spektrogrammen und den Tabellenwerten der Wellenlängen müssen die Maxima der Linien gut definiert sein

phien des Spektrums vor (Fig. 3). Die Linien verbreitern sich mit steigender Temperatur und zwar unsymmetrisch und gehen zwischen der Temperatur der flüssigen Luft und Zimmertemperatur in dem stark ansteigenden kontinuierlichen Untergrund der Absorption unter. Sie verbreitern sich schneller nach kleineren Energien hin als nach großen. Die Unsymmetrie der Linien ist daher entgegengesetzt unserer Vor-

stellung, die annimmt, daß Excitonen mit $\mathfrak{R}=0$ niedrigere Energie haben als bewegte Excitonen. Wenn man, wie wir, von zwei einfachen Bändern für Valenz- und Leitungselektronen ausgeht, deren kleinster Abstand bei $\mathfrak{k}=0$ liegt, hat das Excitonenband auch sein Minimum bei $\mathfrak{R}=0$. Bei einer komplizierteren Bandstruktur aber kann es durchaus vorkommen, daß Excitonen mit $\mathfrak{R}=0$ maximale Energie im Excitonenband haben oder daß die Extremalenergien bei ganz anderen \mathfrak{R} -Vektoren liegen. Jedenfalls führen wir die Unsymmetrie der Absorptionslinien auf das Excitonenpektrum zurück. Weil nur die Schallquanten stark an das Exciton gekoppelt sind, deren Wellenlänge $\frac{2\pi}{\mathfrak{k}}$ vergleichbar mit dem Excitonendurchmesser ist, spielen lange Wellen bei Cu_2O die Hauptrolle, und nach dem Quasiimpulssatz werden bei Übergängen mit wenigen Schallquanten nur langwellige Excitonen erzeugt. Daher sind die Linien so scharf.

Zum Vergleich mit unseren Formeln müßten einzelne Linien bei verschiedenen Temperaturen photometriert werden. Aus den Photometerkurven sollte man versuchen, den Übergang ohne Veränderung des Schallfeldes herauszupräparieren [$W(T; 0, 0)$ von Formel (3.48)]. Dazu

wäre das Integral der Kurve mit Formel (3.46) oder eventuell (3.47) zu vergleichen.

Offensichtlich bleibt bei GROSS' Messungen auch am absoluten Nullpunkt ($T = 1,3^\circ \text{K}$) eine endliche Breite übrig und die Linie ist dann ganz besonders unsymmetrisch (z.B. Abb. 11 in ²). Sie sollte die Absorption unter Erzeugung von Schallquanten enthalten. Bei Stoffen, die unserem Modell mehr entsprechen, würde man aus dem Integral über die Linienform $Q = \sum_{\mathbf{k}} |\alpha_{\mathbf{k}}^i|^2$ ermitteln können. Für den Fall nämlich, daß man ω_0^i als ungefähr konstant ansehen kann folgt aus (3.27)

$${}_0W = \sum_i {}_0W(i) = P \cdot e^{-Q} \cdot (\omega_0^i)^3 \cdot \frac{1}{1-Q}$$

für die Gesamtabsorption. Wenn man nun ${}_0W(0)$ für sich noch kennt, kann man Q ausrechnen.

Die von GROSS gemessenen Linien verschieben sich mit wachsender Temperatur zu größeren Wellenlängen. Auch unsere Formeln ergeben eine Verschiebung in gleicher Richtung. Aber dazu kommt der wichtige Anteil an der Verschiebung, den die Änderung der Dielektrizitätskonstante mit der Temperatur bewirkt.

Zusätzlich zu der oben diskutierten sog. gelben Serie gibt es eine grüne Serie, um die Reststrahlenfrequenz $\delta\omega = \frac{1}{\hbar} \cdot 0,131 \text{ eV}$ gegen die gelbe verschoben. Wir deuten sie als Absorption unter Erzeugung eines Quants eines optischen Zweiges. Die Breite der Linien wird durch die akustischen Schwingungen allein bewirkt.

Herrn Professor Dr. GÜNTHER LEIBFRIED danke ich herzlich für viele Diskussionen und Anregungen während der Anfertigung dieser Arbeit.

Anhang

Berechnung des Übergangsmatrixelementes Licht—Exciton (3.10)

$$\left. \begin{aligned} {}_{\mathfrak{N}}S_{\mathfrak{w}}^{\mathfrak{R}} &= \left({}_{\mathfrak{N}}\Psi_{\mathfrak{R}} A_{\mathfrak{M}-1_{\mathfrak{w}}}^{\tau}, \sum_{\mathfrak{w}'} W_{\mathfrak{w}'}^{\tau'} {}_{\mathfrak{N}}\Psi_g A_{\mathfrak{M}} \right) \\ &= -\frac{e}{mc} \sum_{\mathfrak{w}'} \sum_{\mathfrak{i}} \left({}_{\mathfrak{N}}\Psi_{\mathfrak{R}}, \left(\hat{\mathfrak{s}}_{\mathfrak{w}'}^{\tau'} \mathfrak{p}_{\mathfrak{i}} \right) e^{i\mathfrak{w}'\mathfrak{r}_{\mathfrak{i}}} {}_{\mathfrak{N}}\Psi_g \right) \times \\ &\quad \times \left(A_{\mathfrak{M}-1_{\mathfrak{w}}}^{\tau}, a_{\mathfrak{w}'}^{\tau'} A_{\mathfrak{M}} \right) \cdot D_{\mathfrak{w}'} \end{aligned} \right\} \quad (\text{a.1})$$

Wir setzen $e^{i\mathfrak{w}\mathfrak{r}_{\mathfrak{i}}} = 1$ (Dipolnäherung). Dann aber folgt:

$$\left({}_{\mathfrak{N}}\Psi_{\mathfrak{R}}, \mathfrak{p}_{\mathfrak{i}} {}_{\mathfrak{N}}\Psi_g \right) = im \cdot \frac{1}{\hbar} \left(E^{\mathfrak{N}'}(\mathfrak{R}) - \hbar \sum_{\mathfrak{k}} \omega_{\mathfrak{k}}^{\lambda} n_{\mathfrak{k}}^{\lambda} \right) \cdot \left({}_{\mathfrak{N}}\Psi_{\mathfrak{R}}, \mathfrak{r}_{\mathfrak{i}} {}_{\mathfrak{N}}\Psi_g \right). \quad (\text{a.2})$$

Denn es gilt auch bei unserem komplizierten System aus Elektronen und Schallfeld wie beim einzelnen Atom

$$(H\mathfrak{x} - \mathfrak{x}H) = \frac{\hbar}{im} \mathfrak{p}_{\mathfrak{x}} \quad (\text{a.3})$$

und also mit $H \mathfrak{H} \Psi_g = \hbar \sum_{\mathfrak{t} \lambda} \omega_{\mathfrak{t}}^{\lambda} n_{\mathfrak{t}}^{\lambda} \mathfrak{H} \Psi_g$ und $H \mathfrak{H} \Psi_{\mathfrak{R}} = E_{(\mathfrak{R})}^{\mathfrak{H}} \mathfrak{H} \Psi_{\mathfrak{R}}$ die Gl. (a.2).

Damit aber wird aus (a.1):

$$\begin{aligned} \mathfrak{H} \Psi_{\mathfrak{w}}^{\mathfrak{R}} = & - \frac{e}{m c} \cdot \frac{1}{N} \sum_{m n} U^*(m-n) e^{i \frac{\mathfrak{R}}{2} \mathfrak{H} m+n} \times \\ & \times \sum_{\mathfrak{w}' \tau'} \left(A_{m n}, \sum_i \left(\mathfrak{E}_{\mathfrak{w}'}^{\tau'}, \mathfrak{r}_i \right) A_0 \right) \cdot \left(O^{m n} \Phi^{\mathfrak{H}'} , \Phi^{\mathfrak{H}} \right) \times \\ & \times \left(A_{m-1 \mathfrak{w}}^{\tau}, d_{\mathfrak{w}'}^{\tau'} A_m \right) D_{\mathfrak{w}'} . \end{aligned}$$

Es sind

$$\left(A_{m-1 \mathfrak{w}}^{\tau}, d_{\mathfrak{w}'}^{\tau'} A_m \right) = \sqrt{m_{\mathfrak{w}}^{\tau}} \delta_{\mathfrak{w} \mathfrak{w}'} \delta_{\tau \tau'} \quad (\text{a.4})$$

und

$$\begin{aligned} \left(O^{m n} \Phi^{\mathfrak{H}'} , \Phi^{\mathfrak{H}} \right) &= e^{-\frac{1}{2} \sum |\alpha_{\mathfrak{t}}^{\lambda}|^2} \left(e^{-\sum b_{\mathfrak{t}}^{\lambda} \alpha_{\mathfrak{t}}^{\lambda*} e^{i \frac{\mathfrak{t}}{2} \mathfrak{H} m+n}} \beta^{\mathfrak{H}'} \Phi^0 , e^{\sum b_{\mathfrak{t}}^{\lambda} \alpha_{\mathfrak{t}}^{\lambda*} e^{i \frac{\mathfrak{t}}{2} \mathfrak{H} m+n}} \beta^{\mathfrak{H}} \Phi^0 \right) \\ &= e^{-\frac{1}{2} \sum |\alpha_{\mathfrak{t}}^{\lambda}|^2} \left(\prod_{\mathfrak{t} \lambda}^{\mathfrak{H}'} \frac{(b_{\mathfrak{t}}^{\lambda} - \alpha_{\mathfrak{t}}^{\lambda*} e^{i \frac{\mathfrak{t}}{2} \mathfrak{H} m+n})^{n_{\mathfrak{t}}^{\lambda'}}}{\sqrt{n_{\mathfrak{t}}^{\lambda'}!}} \Phi^0 , \prod_{\mathfrak{t} \lambda}^{\mathfrak{H}} \frac{(b_{\mathfrak{t}}^{\lambda} + \alpha_{\mathfrak{t}}^{\lambda*} e^{i \frac{\mathfrak{t}}{2} \mathfrak{H} m+n})^{n_{\mathfrak{t}}^{\lambda}}}{\sqrt{n_{\mathfrak{t}}^{\lambda}!}} \Phi^0 \right) . \end{aligned}$$

Bezeichnen wir $\alpha_{\mathfrak{t}}^{\lambda*} e^{i \frac{\mathfrak{t}}{2} \mathfrak{H} m+n} = A_{\mathfrak{t}}^{\lambda*}$, so bleibt zu berechnen:

$$\left(\Phi^0 , \prod_{\mathfrak{t} \lambda} \frac{(b_{\mathfrak{t}}^{\lambda} - A_{\mathfrak{t}}^{\lambda})^{n_{\mathfrak{t}}^{\lambda'}} (b_{\mathfrak{t}}^{\lambda} + A_{\mathfrak{t}}^{\lambda*})^{n_{\mathfrak{t}}^{\lambda}}}{\sqrt{n_{\mathfrak{t}}^{\lambda'}!} \sqrt{n_{\mathfrak{t}}^{\lambda}!}} \Phi^0 \right) .$$

Einer dieser Faktoren ergibt:

$$\begin{aligned} & \left(\Phi^0 , \frac{(b - A)^{n'} (b + A)^n}{\sqrt{n'!} n!} \Phi^0 \right) \\ &= \frac{1}{\sqrt{n'!} n!} \left[\binom{n'}{0} n(n-1) \dots (n-n'+1) A^{*n-n'} ; \right. \\ & \quad \left. + \binom{n'}{1} n \dots (n-n'+2) A^{*n-n'+1} (-A) + \dots + \binom{n'}{n'} A^{*n} (-A)^{n'} \right] \text{ für } n' < n \\ &= \frac{1}{n!} \left[\binom{n}{0} n! + \binom{n}{1} \frac{n!}{1!} A^* (-A) + \dots + \binom{n}{n} \frac{n!}{n!} A^{*n} (-A)^n \right] \text{ für } n' = n \\ &= \frac{1}{\sqrt{n'!} n!} \left[\binom{n}{0} n' (n'-1) \dots (n'-n+1) (-A)^{n'-n} + \dots + \binom{n}{n} A^{*n} (-A)^n \right] \\ & \quad \text{für } n' > n . \end{aligned}$$

In den Formeln für $n' \geq n$ können wir alle Glieder bis auf das erste fortlassen, in der Formel für $n' = n$ alle bis auf die ersten beiden, weil A einen Faktor $1/\sqrt{N}$ enthält und die anderen Glieder bei Summation klein gegen die ersten bleiben. Die Formeln für $n' \geq n$ erhalten einen Faktor

$$\frac{n(n-1) \dots (n-n'+1)}{\sqrt{n'!} n!} = \frac{n!}{n'! \sqrt{n'!} n!} = \sqrt{\frac{n!}{(n'!)^3}} \text{ für } n' < n$$

bzw. $\sqrt{n'!/(n!)^3}$ für $n' < n$. Wir bezeichnen

$$\sqrt{\frac{n!}{(n'!)^3}} = F(n', n). \quad (\text{a.5})$$

Für $n' = n$ ist das Ergebnis $(1 - n|A|^2)$. Weil $|A|^2 = |\alpha|^2 \sim 1/N$, gilt also in sehr guter Näherung

$$\left(\Phi^0, \frac{(b-A)^n (b^* + A^*)^n}{n!} \Phi^0 \right) = e^{-n|\alpha|^2}.$$

Mit den Bezeichnungen des Abschnittes 3 folgt daher:

$$\left(O^{mn} \beta^{\mathfrak{M}'} \Phi^0, \beta^{\mathfrak{M}} \Phi^0 \right) = e^{-\frac{1}{2} \sum_{\mathfrak{t}\lambda} |\alpha_{\mathfrak{t}}^{\lambda}|^2 - \sum_{\mathfrak{t}\lambda} |\alpha_{\mathfrak{t}}^{\lambda}|^2 n_{\mathfrak{t}}^{\lambda}} \cdot \prod_{\mathfrak{t}\lambda} (\alpha_{\mathfrak{t}}^{\lambda*})^{n_{\mathfrak{t}}^{\lambda} - n_{\mathfrak{t}}^{\lambda'}} \cdot F(n_{\mathfrak{t}}^{\lambda'}, n_{\mathfrak{t}}^{\lambda}) \cdot \left. \begin{aligned} & \cdot \prod_{\mathfrak{t}\lambda} (-\alpha_{\mathfrak{t}}^{\lambda})^{n_{\mathfrak{t}}^{\lambda'} - n_{\mathfrak{t}}^{\lambda}} \cdot F(n_{\mathfrak{t}}^{\lambda}, n_{\mathfrak{t}}^{\lambda'}) \cdot e^{i \sum_{\mathfrak{t}\lambda} \frac{\mathfrak{t}}{2} (n_{\mathfrak{t}}^{\lambda'} - n_{\mathfrak{t}}^{\lambda}) \mathfrak{R}_{m+n}} \end{aligned} \right\} \quad (\text{a.6})$$

Führen wir die neuen Indices \mathfrak{t} und \mathfrak{s} ein durch

$$m + n = \mathfrak{s}; \quad m - n = \mathfrak{t}, \quad (\text{a.7})$$

so ergibt die von \mathfrak{s} abhängige Summe für die beteiligten Wellenvektoren von Exciton und Schall

$$N \cdot \delta_{\mathfrak{R} + \sum_{\mathfrak{t}\lambda} \mathfrak{t} (n_{\mathfrak{t}}^{\lambda'} - n_{\mathfrak{t}}^{\lambda}), 0} \quad (\text{a.8})$$

und übrig bleibt gerade die Formel (3.10) wenn man zur Abkürzung L einführt.

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Gießen

Thermoelektronen- und induzierte Photoelektronenemission bei Zinksulfid *

Von

WOLFGANG BEHMENBURG

Mit 6 Figuren im Text

(Eingegangen am 19. Mai 1961)

Thermo-electron-emission (TE), thermo-luminescence (TL), and induced photo-electron-emission (IPE) of ZnS were investigated after electron bombardment. In contrary to other substances TE and TL of ZnS are of different origin. TL is caused by traps within the forbidden energy gap in the interior of the crystal, whereas a sorption layer on the crystal surface is responsible for TE. IPE is caused by a third mechanism.

I. Einleitung

Seit den ersten Versuchen KRAMERS¹ ist das Problem der Nachelektronenemission (Exoelektronenemission) Gegenstand zahlreicher Untersuchungen. Es handelt sich dabei um eine zeitlich abklingende Elektronenemission aus Kristalloberflächen nach vorhergehender Anregung. Nach dem Abklingen kann während Temperaturerhöhung oder Bestrahlung mit sichtbarem oder ultrarotem Licht eine erneute Elektronenemission beobachtet werden. Im einen Fall spricht man von *Thermoelektronenemission* (TE), im anderen von *induzierter Photoelektronenemission* (IPE). Verschiedene Autoren^{2,3} haben gezeigt, daß bei einigen Leuchtstoffen diese Erscheinungen der Nachelektronenemission Gesetzmäßigkeiten ähnlich denen der Lumineszenz und *Thermolumineszenz* (TL) unterliegen. Insbesondere wurde, z.B. bei NaCl, ein ähnlicher Verlauf der TE- und TL-Glow-Kurven beobachtet, wobei entsprechende Maxima bei der gleichen Temperatur auftraten. Heute wird vielfach die Meinung vertreten^{4–6}, daß sowohl die Nachelektronenemission als auch Lumineszenz und TL durch besetzte Haftstellen in der verbotenen Zone zwischen Valenz- und Leitungsband des Kristallinnern bedingt sind. Insbesondere würde man beim Zusammenfallen von TE- und TL-Maxima vermuten, daß die entsprechenden Haftstellen

* Auszug aus D 26.

¹ KRAMER, J.: Z. Physik **125**, 739 (1949).

² BOHUN, A.: Czech. J. Phys. **5**, 2 (1955).

³ LEPPER, J.: Z. Naturforsch. **10a**, 47 (1955).

⁴ BOHUN, A.: Czech. J. Phys. **6**, 141 (1956).

⁵ NASSENSTEIN, H.: Naturwissenschaften **41**, 329 (1954).

⁶ HANLE, W.: Acta phys. Austriaca **4**, 339 (1957).

identisch sind. Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, die Allgemeingültigkeit dieser Vorstellungen an ZnS- und ZnO-Leuchtstoffen zu prüfen. Dazu dienen Paralleluntersuchungen von TE und TL und das Studium der IPE.

II. Experimentelles

Untersucht wurden Schmelzlinge, die in einem Hochdruckofen bei etwa 1800° C in reduzierender Atmosphäre hergestellt wurden⁷, teils Pulver des Reinheitsgrades pa. Die Schmelzlinge waren polykristallin und wurden mit verdünnter Salzsäure geätzt. Als Probenhalterung wurde ein Kupferblock verwendet, auf dem die Schmelzlinge mit platinieren Kupfer-Beryllium-Klämmerchen befestigt, bzw. die Pulver durch fluoreszenzreines Xylol sedimentiert wurden. Der Kupferblock war an ein Neusilberrohr angelötet, das innen geheizt oder mit flüssiger Luft gefüllt werden konnte, so daß Messungen im Temperaturbereich zwischen -150° C und +240° C möglich waren. Die Aufheizgeschwindigkeit bei der Aufnahme der Glow-Kurven war annähernd konstant (20°/min). Die Messungen wurden in einer Vakuumapparatur⁸ mit einem Endvakuum von etwa 10^{-5} Torr durchgeführt.

Die Anregung der Proben erfolgte durch 4 keV-Elektronen. Der auf die Probenoberfläche auftreffende Elektronenstrom betrug etwa 10 μ A. Zur Untersuchung der IPE diente eine 100 W-Wolframlampe, deren Glühwendel durch die Glaswandung der Apparatur auf die Probenoberfläche abgebildet wurde. Durch Interferenz- oder Kantenfilter wurden einzelne Wellenlängenbereiche ausgeblendet. Die Registrierung der emittierten Elektronen erfolgte mit einem in das Vakuumgefäß eingebauten 17stufigen Multiplier und einer elektronischen Zählvorrichtung, die der Lumineszenz durch einen außerhalb angebrachten Photomultiplier mit Galvanometer.

III. Meßergebnisse

1. Thermoelektronenemission und Thermolumineszenz

Fig. 1 zeigt den Verlauf der Glow-Kurven der TE bzw. TL eines undotierten ZnS-Schmelzlings. Für den Verlauf der TE unterhalb Zimmertemperatur wurde ein um den Faktor 5 größerer Maßstab als für den übrigen Temperaturbereich verwendet. Die TE besitzt ein ausgeprägtes Maximum bei +70° C und ein Nebenmaximum bei +90° C. Unterhalb Zimmertemperatur treten zwei weitere Maxima auf, deren Intensität aber um mehr als eine Zehnerpotenz geringer ist als die des +70° C-Maximums. Die TL-Glow-Kurve zeigt dagegen Maxima bei -40° C und +140° C. TE- und TL-Maxima liegen bei ganz verschiedenen Temperaturen und gehören daher zu verschiedenen Haftstellen.

⁷ GERSTNER, H.: Diss. Gießen 1961.

⁸ GOURGE, G.: Z. Physik **153**, 186 (1958).

Dafür spricht auch, daß die TE-Kurven von Mn- und Cu-dotierten ZnS-Proben mit der des undotierten ZnS übereinstimmen, hingegen sich die

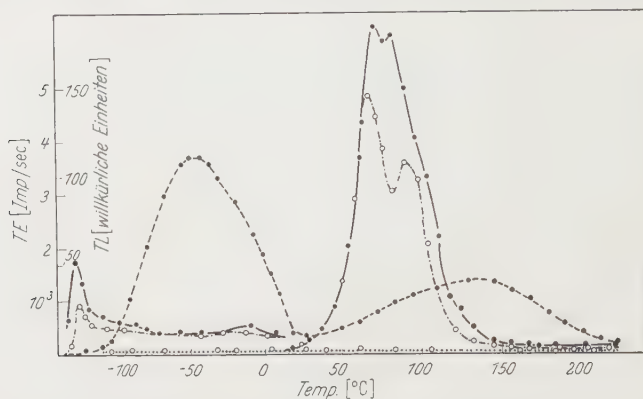


Fig. 1. Glow-Kurven von undotiertem ZnS nach Anregung durch 4 keV-Elektronen bei -150°C (10^{15} Elektronen auf 2 mm^2). Die Glow-Kurven der Thermoelektronenemission sind unterhalb Zimmertemperatur fünfmal überhöht. — Thermoelektronenemission (TE); --- Thermolumineszenz (TL); - · - · - TE nach Bestrahlung mit Licht ($577\text{ m}\mu$); · · · · · TL nach Bestrahlung mit Licht ($577\text{ m}\mu$)

TL-Glow-Kurven der aktivierten Substanzen sowohl von denen der undotierten als auch untereinander unterscheiden.

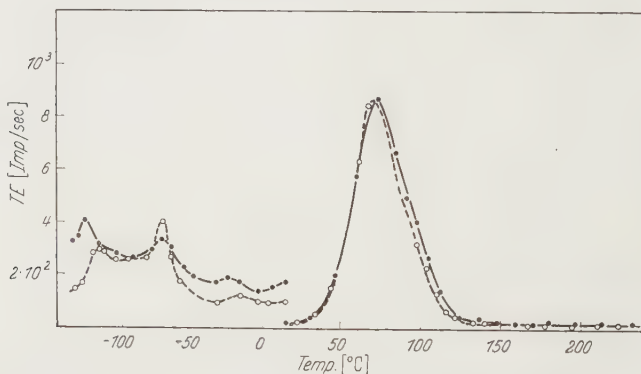


Fig. 2. Glow-Kurven von ZnO nach Anregung durch 4 keV-Elektronen bei -150°C (10^{15} Elektronen auf 2 mm^2). Die Kurven sind unterhalb Zimmertemperatur fünfmal überhöht. — Thermoelektronenemission; --- Thermoelektronenemission nach Bestrahlung mit Licht ($544\text{ m}\mu$)

Bestrahlt man die Proben nach der Anregung kurze Zeit mit $577\text{ m}\mu$ -Licht (wobei die unter 2. beschriebene IPE auftritt), und nimmt anschließend die Glow-Kurve auf, so ist die Intensität der TE-Maxima nur wenig geringer als bei der Glow-Kurve, die man ohne vorhergehende Belichtung erhält (Fig. 1). Dagegen ist nach der Bestrahlung mit Licht

beim Aufheizen keine Lumineszenz mehr zu beobachten. Auch dies zeigt, daß beim ZnS TE und TL verschiedene Ursachen haben.

Hinweise bezüglich der Herkunft der TE von ZnS gibt ein Vergleich mit dem Verlauf der TE von fluoreszenzreinem, pulverisiertem ZnO, die nahezu mit der TE-Kurve des ZnS übereinstimmt (Fig. 2); lediglich bei -70°C tritt ein zusätzliches Maximum geringer Intensität auf. Auch bei anderen Oxyden liegen, wie wir und auch andere Autoren⁹ feststellen konnten, oberhalb Zimmertemperatur die TE-Maxima bei den gleichen Temperaturen wie die des ZnO. Die daraus zu ziehenden Folgerungen bezüglich des Ursprungs der TE bei ZnS werden in Kapitel IV diskutiert.

2. Induzierte Photoelektronenemission

ZnS zeigt auch den von anderen Autoren bei Alkalihalogeniden¹⁰ und bei Germanium¹¹ bereits beobachteten sog. induzierten Photoeffekt (IPE). Darunter wird eine Emission von Photoelektronen bereits bei Bestrahlung mit sichtbarem oder ultrarotem Licht verstanden, wenn der Kristall vorher mit Elektronen angeregt worden war. Im Gegensatz zum gewöhnlichen Photoeffekt, der ohne vorhergehende Anregung des Kristalls erst bei Bestrahlung mit genügend kurzwelligem Licht auftritt, nimmt die Intensität der IPE während der Belichtung ab, wie Fig. 3 in doppelt logarithmischem Maßstab beim ZnS zeigt. Als Zeitnullpunkt wurde der Beginn der Lichteinstrahlung gewählt, der 1 min nach Beginn eines Elektronenbeschusses von 15 sec Dauer einsetzte. (Der Dunkelstrom, der um mehr als eine Größenordnung geringer als der Photostrom war, ist bei den eingetragenen Meßwerten bereits abgezogen). Der Kurvenverlauf ist eine Überlagerung zweier Geraden wenig verschiedener Neigung.

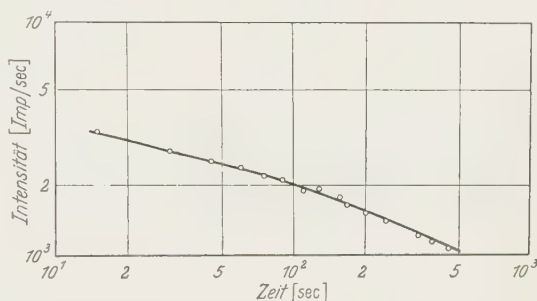


Fig. 3. Zeitliche Abnahme der induzierten Photoelektronenemission (IPE) von ZnS während Lichteinstrahlung (464 m μ) nach Anregung durch 4 keV-Elektronen (10^{15} Elektronen auf 2 mm²). Anregung und Messung bei Zimmertemperatur

Es erhob sich nun die Frage, ob die IPE etwas mit den für die TE bzw. TL verantwortlichen Haftstellen zu tun hat. Zur Prüfung wurde die Abhängigkeit der Intensität der IPE von der Zeit nach der Anregung bis zum Beginn der Lichteinstrahlung (Wartezeit) untersucht. Fig. 4

⁹ HIESLMEIER, H., u. H. MÜLLER: Acta Phys. Austriaca **10**, 353 (1957).

¹⁰ APKER, L., and E. TAFT: Phys. Rev. **79**, 964 (1950).

¹¹ SEEGER, H.: Z. Physik **149**, 453 (1957).

zeigt, wie die IPE mit zunehmender Wartezeit abnimmt. Beim Vergleich mit dem zeitlichen Verlauf der Nachemission und der Lumineszenz sieht man, daß diese viel

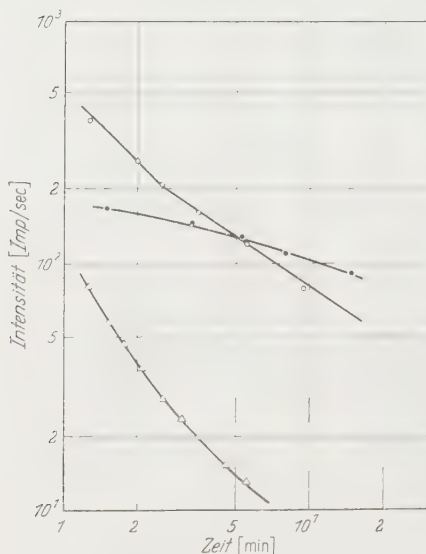


Fig. 4. ●—●—● Intensität der induzierten Photoelektronenemission bei ZnS nach Anregung durch 4 keV-Elektronen (10^{15} Elektronen auf 2 mm^2) in Abhängigkeit von der Wartezeit. Bestrahlung mit Gelbfilterlicht (Schott-Filter GG 14). ○—○—○ Nachelektronenemission. △—△—△ Lumineszenz. Anregung und Messung bei Zimmertemperatur

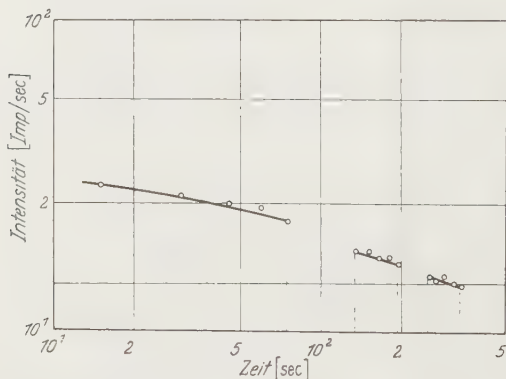


Fig. 5. Zeitliche Abnahme der induzierten Photoelektronenemission bei ZnS nach Anregung durch 4 keV-Elektronen (10^{15} Elektronen auf 2 mm^2) während und ohne Lichteinstrahlung (Schott-Filter GG 14). Anregung und Messung bei Zimmertemperatur

schneller abklingen als die IPE (Fig. 4). Die IPE-Zustände sind also von den Haftstellen verschieden, die bei Zimmertemperatur Nachemission und Lumineszenz verursachen.

Die IPE-Zustände unterscheiden sich aber auch von den Haftstellen, die das $+70^\circ \text{C}$ -TE-Maximum und das $+140^\circ \text{C}$ -TL-Maximum bedingen. Heizt man nämlich die ZnS-Probe nach der Anregung bei Zimmertemperatur bis $+140^\circ \text{C}$ auf und kühlt anschließend wieder ab, so kann man immer noch eine IPE beobachten.

Die Intensität der IPE hängt von der Temperatur ab. Hierzu wurde die Probe nach der Anregung mit Elektronen bei -140°C zunächst bis $+240^\circ \text{C}$ aufgeheizt und anschließend wieder auf -140°C abgekühlt. Danach wurde mit $464 \text{ m}\mu$ -Licht eingestrahlt und nach dem Abklingen der IPE erneut aufgeheizt. Oberhalb Zimmertemperatur ist eine erneute Photoemission zu beobachten, deren Intensität bis an die Grenze des untersuchten Temperaturbereichs ($+240^\circ \text{C}$) mit steigender Temperatur ständig zunimmt. Dieser Anstieg der Intensität der

IPE kann auch nach wiederholter Abkühlung und Lichteinstrahlung beobachtet werden, wird jedoch allmählich schwächer.

Um den Zusammenhang zwischen der Abnahme der Intensität der IPE mit und ohne Lichteinstrahlung zu untersuchen, wurde abwechselnd 1 min lang der zeitliche Verlauf der IPE verfolgt und 1 min lang die Probe im Dunkeln gelassen. In Fig. 5 ist bei den eingezeichneten Meßwerten die Dunkelmission bereits abgezogen. Man sieht, daß die Abnahme der Intensität der IPE unabhängig davon erfolgt, ob Photoelektronen zur Emission gebracht werden oder nicht. Die Anfangsintensität der IPE nimmt etwa proportional zur Intensität des eingestrahlten Lichts zu. Dagegen ändert sich die Geschwindigkeit der Intensitätsabnahme der IPE nur wenig mit der Intensität des eingestrahlten Lichts (Fig. 6).

Auch bei ZnO wird nach Anregung durch Elektronen bei Lichteinstrahlung eine zeitlich abnehmende Elektronenemission beobachtet. Die Geschwindigkeit der Intensitätsabnahme ist auch hier im wesentlichen unabhängig von der Zahl der zur Emission gebrachten Photoelektronen. Im Gegensatz zu ZnS ist jedoch beim ZnO die IPE temperaturunabhängig.

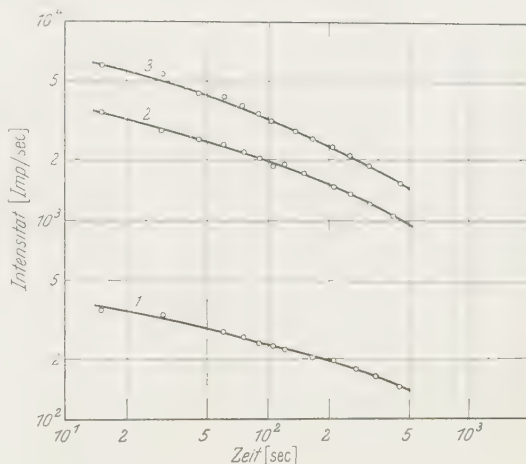


Fig. 6. Zeitliche Abnahme der induzierten Photoelektronenemission bei ZnS nach Anregung durch 4 keV-Elektronen (10^{15} Elektronen auf 2 mm^2) in Abhängigkeit von der eingestrahlten Lichtintensität I (104 mgl. Anregung und Messung bei Zimmertemperatur. Kurve 1: $I = 5 \cdot 10^{-7} \text{ W}$ auf 2 mm^2 ; Kurve 2: $I = 5 \cdot 10^{-8} \text{ W}$ auf 2 mm^2 ; Kurve 3: $I = 10^{-8} \text{ W}$ auf 2 mm^2

IV. Diskussion der Ergebnisse

Während bei Alkalihalogeniden Thermoelektronenemission und Thermolumineszenz nach Entleerung der gleichen Haftstellen erfolgen, ist dies beim ZnS entsprechend den angeführten Experimenten ganz anders. Die Lumineszenz stammt aus dem Kristallinnern mit den bekannten Haftstellen des ZnS. Demgegenüber müssen für die Thermoelektronenemission Haftstellen in einer Sauerstoffsorptionsschicht an der Kristalloberfläche verantwortlich gemacht werden, wie sie von MENOLD¹² für ZnO angenommen wurde. Dafür spricht, daß der Verlauf der Thermoelektronenemission bei ZnS mit dem von ZnO und einigen anderen Oxyden im wesentlichen übereinstimmt.

¹² MENOLD, R.: Z. Physik **157**, 499 (1960).

Die induzierte Photoelektronenemission bei ZnS wird durch eine besondere Art von Zuständen verursacht. Sie unterscheiden sich sowohl von den Haftstellen der Thermoemission als auch der Thermolumineszenz. Der zeitliche Verlauf der IPE bei zeitweiser Unterbrechung der Lichteinstrahlung (Fig. 5) deutet darauf hin, daß die Elektronen der IPE aus einem großen Elektronenreservoir kommen, möglicherweise aus inneren Schichten. Ob die Temperaturabhängigkeit der IPE so zu verstehen ist, daß die IPE-Zustände von anderen thermisch aufgefüllt werden, oder ob es sich um eine thermische Beeinflussung der Sauerstoffsorptionschicht handelt, wodurch die Austrittswahrscheinlichkeit der Elektronen beeinflußt wird, kann nicht entschieden werden.

Herrn Professor Dr. W. HANLE und Herrn Priv.-Doz. Dr. A. SCHARMANN danke ich für die Anregung dieser Arbeit und stete Förderung, Herrn Dr. E. A. SCHWAGER und Herrn Dr. H. GERSTNER für mancherlei Hilfe und der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die Bereitstellung von Mitteln.

Aus dem I. Physikalischen Institut der Universität Göttingen

Messung der Fehlordnungsenergie an abschreckend kondensierten Metallschichten bei tiefer Temperatur

Von

WINFRIED MÖNCH

Mit 7 Figuren im Text

(Eingegangen am 5. Juni 1961)

Metal films are produced with a high degree of disorder by quenching condensation. The stored energy release and the resistivity decrease are measured during annealing of Au-, Pb-, and Sn-films from 20 to 60° K and during crystallization of amorphous Sn-films with a 10 atomic-% Cu-content. The results are compared with earlier measurements on Bi-, Ga-, and Cu-films produced by quenching condensation. The energy released during the crystallization of the amorphous films (Bi, Ga, Sn + 10 at.-% Cu) amounts to half of the heat of melting. This is in good agreement with calculations of ORIANI and LUMSDEN for the disorder part of the entropy of melting. The recovery of the crystalline Cu-, Au-, Pb-, and Sn-films is described by a crystallization of highly disordered atoms to crystallites formed during condensation. About 30% of all atoms of these films are in this highly disordered state.

§ 1. Einleitung

Dünne Schichten, die durch Aufdampfen bei tiefer Temperatur hergestellt werden, haben einen hohen Gehalt an Gitterstörungen. So liegen z.B. nach dieser abschreckenden Kondensation Bi- und Ga-Schichten amorph vor¹, während alle anderen bisher untersuchten reinen Metalle sofort kristallin entstehen². Die Ausscheidung der eingefrorenen Fehlordnung kann an irreversiblen Änderungen z.B. der elektrischen³ und optischen Eigenschaften⁴ und an Untersuchungen der Röntgen-⁵ und Elektronenbeugung² bei Erhöhung der Temperatur beobachtet werden.

Die Umwandlung der amorphen Bi- und Ga-Schichten hat SANDER⁶ auch durch Messungen der dabei freiwerdenden Energie verfolgt. Die Umwandlungswärmen betragen etwa die Hälfte der Schmelzwärmen. Eine wesentlich geringere Wärmetönung haben MÖNCH und SANDER⁷ bei der Ausscheidung der Fehlordnung in abschreckend kondensierten Cu-Schichten erhalten. Von 20 bis 60° K werden nur 7% der Schmelz-

¹ BUCKEL, W.: Z. Physik **138**, 136 (1954).

² BÜLOW, H., u. W. BUCKEL: Z. Physik **145**, 141 (1956).

³ BUCKEL, W., u. R. HILSCH: Z. Physik **138**, 109 (1954).

⁴ HASSE, J.: Z. Physik **157**, 166 (1959).

⁵ RÜHL, W.: Z. Physik **138**, 121 (1954).

⁶ SANDER, W.: Z. Physik **147**, 361 (1957).

⁷ MÖNCH, W., u. W. SANDER: Z. Physik **157**, 149 (1959).

wärme frei. Die Erholung der Schichten in diesem Temperaturbereich ist durch eine Kristallisation sehr stark fehlgeordneter Atome an die schon beim Aufdampfen entstandenen Kristallite beschrieben worden. Unter Berücksichtigung der Ergebnisse an Bi und Ga sind dann etwa 14% der Cu-Schicht an diesem Prozeß beteiligt.

In der vorliegenden Arbeit wird über Messungen der Wärmetönung und der Restwiderstandsabnahme bei der Erholung abschreckend kondensierter Schichten aus Au, Pb, Sn und Sn + 10 Atom-% Cu berichtet. Die gewonnenen Ergebnisse werden zusammen mit den zitierten Messungen an Bi-, Ga- und Cu-Schichten^{6,7} diskutiert.

Untersuchungen der Elektronenbeugung¹ haben gezeigt, daß Sn-Schichten bei gleichzeitiger Kondensation einiger Atom-% Cu⁸ in einem flüssigkeitsähnlichen Zustand entstehen. Es liegt also nahe, die bei der Erholung reiner Sn-Schichten freiwerdende Energie direkt mit der Umwandlungswärme solcher amorpher Sn-Schichten beim Übergang in den kristallinen Zustand zu vergleichen. Diese Fehlordnungsenergie ΔE wächst nun aber ebenso wie die gleichzeitig auftretende Restwiderstandsabnahme $\Delta \rho$ mit der Zahl der abgebauten Gitterfehler. Der Quotient $\Delta E/\Delta \rho$ aus diesen gemessenen Größen dürfte von dieser Zahl unabhängig sein. Er wird als charakteristisch für die Art der Störung angesehen. Die Werte $\Delta E/\Delta \rho$ sollten dann für die Erholung reiner Sn-Schichten und die Kristallisation amorpher Sn-Schichten gleich sein, wenn die Erholung reiner Schichten im obigen Bilde beschrieben werden kann.

Auf Grund des beobachteten gleichartigen Verhaltens abschreckend kondensierter Schichten reiner Metalle^{2,3} ist anzunehmen, daß ihre Erholung im Tieftemperaturgebiet auf der Ausscheidung gleicher Fehlordnung beruht. Um zu prüfen, ob die obige einfache Vorstellung diese Erholung beschreiben kann, werden die Messungen auch noch auf Au- und Pb-Schichten ausgedehnt. Im Rahmen dieses Bildes ist es dann inöglich, den Anteil der Schichtsubstanz, der an diesem Prozeß beteiligt ist, aus den Absolutwerten der gemessenen Wärmetönungen abzuschätzen.

§ 2. Zur Versuchsanordnung

Zur Bestimmung der Fehlordnungsenergie wird das von SANDER⁶ beschriebene Tieftemperaturkalorimeter benutzt. Es besteht aus einer dünnen Metallfolie, die an zwei Nylontäden thermisch isoliert aufgehängt ist und durch eine von außen zu bedienende Klammer in thermischen Kontakt mit einem Tank gebracht werden kann, der flüssigen oder festen Wasserstoff enthält. Nachdem die angekoppelte Folie mit der zu untersuchenden Substanz bedampft ist, wird sie durch Lösen der

⁸ SCHERTEL, A.: Phys. Verh. **2**, 102 (1951).

Klammer von dem Wasserstoffbad abgekoppelt und anschließend durch eine Lampe konstanter Strahlungsleistung aufgewärmt. Ein Thermoelement registriert ständig die Temperaturdifferenz zwischen der Folie und dem Wasserstoffbad. Haben sich im Verlaufe der Aufnahme dieser Meßkurve — Folientemperatur in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit — Fehlstellen in der Schicht ausgeschieden, so wird die Meßkurve gegenüber einer anschließend unter gleichen Bedingungen aufgenommenen Vergleichskurve einen schnelleren Temperaturanstieg zeigen. Aus der Abweichung beider Kurven voneinander kann die aufgetretene Fehlorderungsenergie bestimmt werden.

Bei den früheren Messungen^{6,7} wurden als Schichtträger dünne Aluminiumfolien — zwischen 10 und 30 μ dick — verwandt und die Temperatur mit einem Manganin/Konstantan-Thermoelement gemessen. In Fig. 1 ist als Kurve 1 der Eichwert einer solchen Kalorimeteranordnung mit einer Al-Folie, deren Masse 40 mg beträgt, aufgetragen. Eine Ausschlagsänderung der Temperaturanzeige auf dem Registrierstreifen um 1 mm bedeutet eine Wärmetönung von $0,65 \cdot 10^{-5}$ cal bei 20° K und von $6,14 \cdot 10^{-5}$ cal bei 90° K. Für die vorliegenden Messungen mußte die Empfindlichkeit verbessert werden. Das ist durch Verwendung empfindlicher Thermoelemente und durch Einbau von Folien mit geringer Wärmekapazität möglich. Kurve 2 in Fig. 1 zeigt die Temperaturabhängigkeit des Eichwertes, wenn das Manganin/Konstantan-Thermoelement gegen eine Kombination aus Gold + 2,11 Atom-% Kobalt* und Konstantan ausgetauscht wird. Der Eichwert beträgt dann $0,25 \times 10^{-5}$ cal/mm bei 20° K und $4,75 \cdot 10^{-5}$ cal/mm bei 90° K. Die Wärmetönung beim Kristallisieren amorpher Sn-Schichten mit Cu-Zusatz wird mit dieser Kalorimeteranordnung bestimmt. Für die Messungen an den reinen Au-, Pb- und Sn-Schichten ist diese Empfindlichkeit oberhalb 35° K jedoch noch zu gering. Die Wärmeentwicklung kann bei diesen Metallen noch bis etwa 65° K verfolgt werden, wenn an Stelle der Aluminiumfolien solche aus Beryllium verwendet werden. Beryllium hat

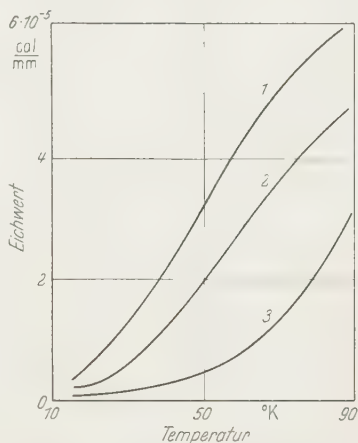


Fig. 1. Eichkurven des Kalorimeters für verschiedene Folien und Thermoelemente. 1 Al-Folie (Masse 40 mg) und Manganin/Konstantan-Thermoelement. 2 Al-Folie (Masse 40 mg) und Au + 2,11 Atom-% Co/Konstantan-Thermoelement. 3 Be-Folie (Masse 77 mg) und Au + 2,11 Atom-% Co/Konstantan-Thermoelement

* Die 25 μ dicken Drähte aus Au + 2,11 Atom-% Co werden von der Sig. Cohn Corp., Mount Vernon, N.Y., bezogen.

im Bereich von 20 bis 60° K eine so geringe spezifische Wärme⁹, daß trotz seines höheren spezifischen Gewichtes gegenüber Al und selbst bei Verwendung dickerer Folien — 50 μ — die Empfindlichkeit doppelt so groß ist. Die Kurve 3 in Fig. 1 zeigt den Verlauf des Eichwertes für eine Be-Folie*, deren Masse 77 mg beträgt, in Verbindung mit einem Au + 2,11 Atom-% Co/Konstantan-Thermoelement. Der Eichwert beträgt $0,13 \cdot 10^{-5}$ cal/mm bei 20° K und $3,17 \cdot 10^{-5}$ cal/mm bei 90° K.

Da zum Vergleich der Metalle untereinander die auf 1 Mol bezogene Wärmetönung interessiert, muß auch die Masse der Schichten bekannt sein. Sie wird durch Wägung bestimmt.

Um auch die Widerstandsänderung beim Anlassen der Schichten verfolgen zu können, wird eine zweite Schicht auf einer kristallinen Quarzplatte kondensiert, die in festem Kontakt mit dem Wasserstofftank steht. Diese ist zur Strom- und Spannungsmessung mit vier Gold-elektroden versehen. Länge und Breite der Schichten betragen stets 1,0 bzw. 0,1 cm; ihre Dicke wird nach der interferometrischen Methode von TOLANSKY¹⁰ bestimmt.

Die Genauigkeit, mit der Masse und Dicke der Schichten ermittelt werden, beträgt etwa je 5%. Ein weiterer Fehler liegt in der Energieeichung und der Auswertung der Registrierstreifen; er dürfte jedoch nicht größer als 15% sein. Der relative Fehler der gemittelten Wärmetönungen in cal/Mol ist somit sicher kleiner als 20%, der auf die spezifische Restwiderstandsabnahme bezogenen Werte in $\frac{\text{cal}}{\text{Mol}}/\mu\Omega\text{cm}$ jedenfalls kleiner als 25%.

§ 3. Ergebnisse

Die Ergebnisse der Messungen an den reinen Metallen** Gold, Blei und Zinn sind in je einem Beispiel in den Fig. 2, 3 und 4 dargestellt. Das obere Teilbild enthält jeweils die Wärmeentwicklung, das untere Teilbild den Widerstand in Abhängigkeit von der Temperatur.

Die auf der Kalorimeterfolie erzeugten Schichten erwärmen sich wegen der Zustrahlung vom Ofen und der freiwerdenden Kondensationswärme schon während des Aufdampfprozesses auf 17 bis 19° K. Deshalb setzt die Wärmeentwicklung erst bei dieser Temperatur ein und steigt dann bis etwa 25° K steil an. Da die jeweiligen Kondensationsbedingungen — Restgase, Aufdampfgeschwindigkeit — das Ausscheiden der Fehlordnung beeinflussen, wird der Widerstandsverlauf bei jeder Messung der Wärmetönung an einer gleichzeitig kondensierten Schicht gemessen. Diese Schicht wird bei 10° K kondensiert, weil die als Schicht-

* Die Berylliumfolien werden von der Fa. Pechiney, Paris, bezogen.

** Es wird „spektrographisch standardisiertes“ Material der Fa. Johnson, Matthey & Co., Ltd., London, verwandt.

⁹ HILL, R. W., and P. L. SMITH: Phil. Mag. **44**, 636 (1953).

¹⁰ TOLANSKY, S.: Nature, Lond. **153**, 314 (1944).

träger dienende Quarzplatte in festem Kontakt mit dem Wasserstoffbad steht.

In den unteren Teilbildern ist die reversible Temperaturabhängigkeit des Widerstandes von 20 bis 60° K gestrichelt eingezeichnet. Die Geraden sind aus dem Verlauf des temperaturabhängigen Anteils des zwischen 20,4 und 77,4° K gemessenen Widerstandes nach dem Anlassen auf etwa

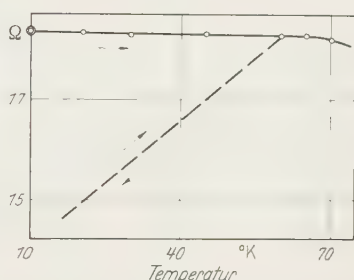
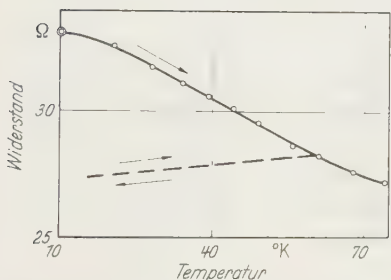
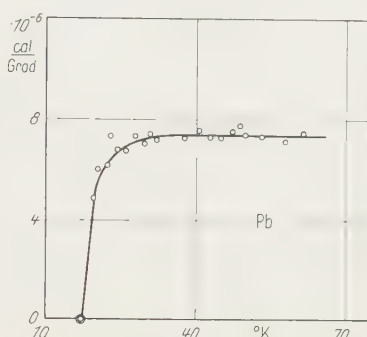
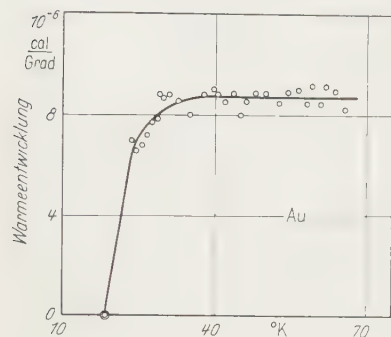


Fig. 2. Oben: Wärmeentwicklung einer Goldschicht (Masse 0,32 mg). Unten: Widerstandsverlauf einer Goldschicht (Dicke 600 Å). ⊙ Kondensations-temperatur

Fig. 3. Oben: Wärmeentwicklung einer Bleischicht (Masse 0,41 mg). Unten: Widerstandsverlauf einer Bleischicht (Dicke 1180 Å). ⊙ Kondensations-temperatur

90° K berechnet. Es wird an mehreren Schichten dieser Metalle geprüft, daß im Rahmen der Meßgenauigkeit auch hier kein Einfluß der Störungen auf den temperaturabhängigen Anteil des Widerstandes bemerkt werden kann¹¹.

Sowohl der Widerstandsverlauf als auch die Wärmeentwicklung sind mit einer mittleren Aufwärmgeschwindigkeit von 5°/min aufgenommen.

Die in der Fig. 2 dargestellte Messung an einer Goldschicht zeigt genau wie für Blei in Fig. 3 eine konstante Wärmeentwicklung von 30 bis 65° K, während bei der Zinnschicht — Fig. 4 — die Wärmeentwicklung mit steigender Temperatur zunimmt. Die in den unteren Teilbildern aufgetragenen Widerstandsverläufe ergeben für Gold und Blei

¹¹ NIEBUHR, J.: Z. Physik **132**, 468 (1952).

eine konstante Restwiderstandsabnahme pro Grad Temperaturerhöhung, während für Zinn dieser Wert mit höherer Anlaßtemperatur zunimmt. Insgesamt werden bei diesen Messungen $3,5 \cdot 10^{-4}$ cal, das sind 210 cal/Mol, in der Goldschicht, $3 \cdot 10^{-4}$ cal (150 cal/Mol) in der Bleischicht und $2,3 \cdot 10^{-4}$ cal (110 cal/Mol) in der Zinnschicht von 20 bis 60° K frei. Im gleichen Temperaturbereich nimmt der Restwiderstand der Goldschicht

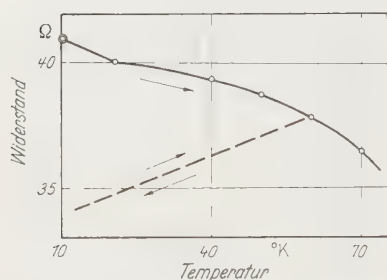
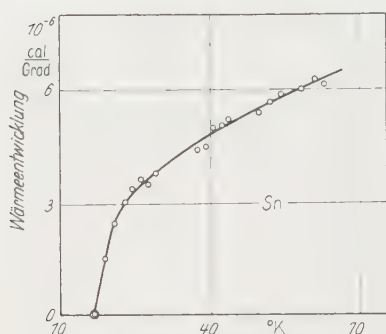


Fig. 4. Oben: Wärmeentwicklung einer Zinnschicht (Masse 0,14 mg). Unten: Widerstandsverlauf einer Zinnschicht (Dicke 520 Å). ○ Kondensations-temperatur

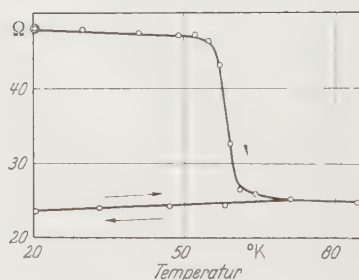
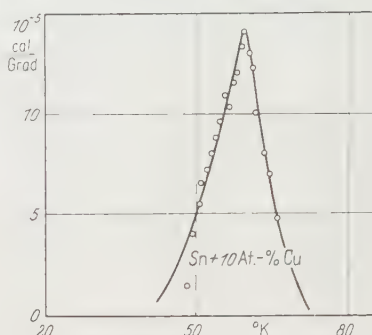


Fig. 5. Oben: Wärmeentwicklung einer Schicht aus Sn + 10 Atom-% Cu (Masse 0,27 mg). Unten: Widerstandsverlauf einer Schicht aus Sn + 10 Atom-% Cu (Dicke 1000 Å). ○ Kondensationstemperatur

um 5 Ω, das sind $3 \mu\Omega\text{cm}$, der Bleischicht um $3,4 \Omega$ ($4 \mu\Omega\text{cm}$) und der Zinnschicht um 4Ω ($2,1 \mu\Omega\text{cm}$) ab.

In der gleichen Auftragung wie bei den reinen Metallen ist in Fig. 5 eine Messung der Wärmeentwicklung und des Widerstandsverlaufes für Schichten aus Zinn mit einem Zusatz von 10 Atom-% Kupfer gezeigt. Die Schichten werden bei etwa 20° K erzeugt, die mittlere Aufwärmgeschwindigkeit beträgt 5°/min. Der Kurve für die Wärmeentwicklung entnimmt man, daß die Kristallisation des Zinns bei etwa 40° K beginnt und bei 70° K abgeschlossen ist. Der Verlauf der Wärmeentwicklung hat die Form einer Glow-Kurve, wie sie aus Lumineszenzexperimenten bekannt ist. Insgesamt werden bei der Kristallisation dieser Schicht $1,7 \cdot 10^{-3}$ cal frei; das sind auf die Masse der Schicht bezogen 780 cal/Mol.

Im gleichen Temperaturbereich nimmt auch der Widerstand sehr stark ab, und zwar sinkt er auf die Hälfte seines Wertes nach der Kondensation¹². Auf die Abmessungen der Schicht bezogen beträgt die Abnahme des spezifischen Restwiderstandes $23 \mu\Omega\text{cm}$.

§ 4. Diskussion

a) Amorphe Schichten. Die schon erwähnten Untersuchungen der Röntgen-⁵ und Elektronenbeugung¹ haben ergeben, daß Bi, Ga und Sn + 10 Atom-% Cu nach abschreckender Kondensation in einem flüssigkeitsähnlichen Zustand vorliegen. Beim Anlassen wandeln sie sich bei einer von der Substanz abhängenden Temperatur in eine kristalline Struktur um. Während bei Bi und Sn + 10 Atom-% Cu sofort die bekannten, stabilen Gitterstrukturen auftreten, erhält man bei Ga zunächst eine unbekannte kristalline Phase. Diese geht dann bei weiterer Temperaturerhöhung in die normale kristalline Struktur des Ga über. An Hand der in Tabelle 1 zusammengestellten Werte sollen diese Um-

Tabelle 1

1	2	3	4
Metall	Q_{ak} (kcal/Mol)	ΔH_s (kcal/Mol)	$Q_{ak}/\Delta H_s$
Sn	0,77	1,69	0,45
Bi	1,45	2,65	0,55
Ga	0,29	0,64	0,45

wandlungen mit dem Schmelzen bzw. Erstarren dieser Metalle verglichen werden. In der Spalte 2 der Tabelle sind die Umwandlungswärmen Q_{ak} für die Sn-Schichten mit Cu-Zusatz und die von SANDER⁶ gemessenen Werte der Bi- und Ga-Umwandlungen vom amorphen in den kristallinen Zustand eingetragen. Für Bi und Sn enthält die nächste Spalte die Schmelzwärmen ΔH_s ¹³. Der in dieser Spalte angegebene Wert für Ga ist einer neueren Arbeit von DEFRAIN und EPELBOIN¹⁴ entnommen. Ihnen ist es gelungen, bei der Erstarrung unterkühlter Ga-Schmelzen bei $-16,3^\circ\text{C}$ eine bisher nur bei hohem Druck bekannte Modifikation nachzuweisen, die sich dann in das normale Gitter des Ga umwandelt. Es handelt sich bei dieser metastabilen Ga-Modifikation wahrscheinlich um die gleiche kristalline Phase, in die sich die amorphen Ga-Schichten bei Temperaturerhöhung zunächst umwandeln. Der in Spalte 4 der Tabelle durchgeführte Vergleich der an abschreckend kondensierten Schichten gemessenen Umwandlungswärmen mit den Schmelzenthalpien der betreffenden Metalle zeigt, daß man für die Übergänge amorph-kristallin bei tiefer Temperatur etwa die halbe Schmelzenthalpie erhält.

Es gibt leider noch keine genaue Theorie der flüssigen Metalle und des Schmelzens. Ganz allgemein ist der Schmelzprozeß durch die experimentell bestimmte Schmelzentropie $\Delta S = \frac{\Delta H_s}{T_s}$ charakterisiert, wobei

¹² FORTMANN, J., u. W. BUCKEL: Z. Physik **162**, 93 (1961).

¹³ Am. Inst. Phys. Handbook, New York 1957.

¹⁴ DEFRAIN, A., et I. EPELBOIN: J. Phys. Radium **21**, 76 (1960).

ΔH_s die Schmelzenthalpie und T_s die Schmelztemperatur sind. Die Schmelzentropie kann sich nun aus zwei Anteilen zusammensetzen. Der erste, ΔS_f , beschreibt eine unstetige Zunahme der Fehlordnung beim Schmelzen; der zweite, ΔS_v , wird durch eine mögliche Änderung der Schwingungsfrequenzen der Atome beim Übergang kristallin-flüssig bedingt. Für diesen Entropieanteil ΔS_v liegen nun von ORIANI¹⁵ und LUMSDEN¹⁶ Abschätzungen vor. Diese Autoren versuchen aus den beim Schmelzen gemessenen Volumenzunahmen die durch diese bedingten Schwingungsänderungen, d.h. die dadurch verursachte Entropieerhöhung, zu berechnen. Das Ergebnis ihrer Rechnung ist, daß für kubisch-flächenzentrierte Metalle ΔS_v — und damit auch ΔS_f — etwa gleich der halben Schmelzentropie ist.

Könnte man eine Metallschmelze bis zu tiefen Temperaturen unterkühlen, so sollte man beim „Erstarren“ in diesem Temperaturgebiet nur den Fehlordnungsanteil der Schmelzenthalpie messen, da die am Schmelzpunkt angeregten Schwingungsfrequenzen bei dieser Temperatur eingefroren sind*. Die Schichten aus Bi, Ga und Sn+10 Atom-% Cu liegen nun nach der abschreckenden Kondensation in einem flüssigkeits-ähnlichen Zustand vor¹⁷. Beschreibt man sie als „unterkühlte Schmelzen“, so sollte die bei der Kristallisation freiwerdende Wärmetönung Q_{ak} etwa gleich dem Fehlordnungsanteil der Schmelzenthalpie sein. Die Abschätzungen für den Fehlordnungsanteil ΔS_f der Schmelzentropie von ORIANI und LUMSDEN haben für die von ihnen betrachteten Metalle ergeben, daß ΔS_f etwa gleich der halben Schmelzentropie sein sollte. Die an den abschreckend kondensierten Schichten gemessenen Werte Q_{ak} betragen ebenfalls etwa die Hälfte der Schmelzenthalpie und stimmen also mit diesen Abschätzungen gut überein**.

* Ähnliche Verhältnisse hat man auch bei einigen Stoffen, die im kristallinen und im glasigen Zustand vorliegen können (z.B. Glycerin, Selen). Die spezifischen Wärmen der betreffenden Substanzen im kristallinen und glasigen Zustand sind bis zum Transformationsintervall des Glases fast gleich. In diesem Bereich steigt die spezifische Wärme des Glases jedoch steil bis etwa auf den Wert der Schmelze an. Der Energieunterschied zwischen Kristall und Glas vom Transformationsintervall bis zum Schmelzpunkt ist etwa gleich der halben Schmelzwärme (A. EUCKEN, Lehrbuch der phys. Chemie, Bd. II/2. Leipzig 1944).

** Die Abschätzungen von ORIANI und LUMSDEN gehen von der gemessenen Volumenzunahme beim Schmelzen der von ihnen betrachteten Metalle aus. Es soll noch erwähnt werden, daß die metastabile Modifikation des Ga — im Gegensatz zu der normalen Struktur — eine größere Dichte hat als die Schmelze¹⁴. Der Vergleich der betrachteten Umwandlungen mit den obigen Abschätzungen ist also für Sn und Ga gerechtfertigt; dies gilt nicht ohne weitere Annahmen für die Bi-Umwandlung, da Bi unter Volumenabnahme schmilzt.

¹⁵ ORIANI, R.A.: J. Chem. Phys. **19**, 93 (1951).

¹⁶ LUMSDEN, J.: Inst. Metals Monograph Ser. No. 11 (1952).

¹⁷ RICHTER, H.: Fortschr. Phys. **8**, 493 (1960).

In gleicher Weise wie die Umwandlungswärmen soll nun die Widerstandsänderung der Sn-Schichten mit Cu-Zusatz beim Kristallisieren des Zinns mit der Widerstandsänderung beim Schmelzen bzw. Erstarren verglichen werden. Der Widerstand der Schichten ändert sich bei der Umwandlung um den Faktor zwei; das entspricht einer Restwiderstandsabnahme von $24 \mu\Omega\text{cm}$. Am Schmelzpunkt des Zinns findet man, daß der Widerstand des flüssigen Metalles um $25,2 \mu\Omega\text{cm}$ größer ist als der des kristallinen¹⁸. Während bei der Kristallisation des amorphen Zinns bei tiefer Temperatur nur etwa die Hälfte der Schmelzenthalpie gefunden wird, erhält man für die Änderung des Widerstandes in beiden Fällen den gleichen Wert. Wenn die Interpretation der Umwandlungswärme bei der Kristallisation des amorphen Zinns als Fehlordnungsanteil der Schmelzenthalpie richtig ist, dann kann man auch die bei beiden Prozessen als gleich groß gefundene Widerstandsänderung dieser Fehlordnung zuordnen.

b) Kristalline Schichten. Während Schichten aus Bi, Ga und Sn + 10 Atom-% Cu nach abschreckender Kondensation in einem flüssigkeitsähnlichen Zustand vorliegen, entstehen alle anderen bisher untersuchten reinen Metalle sofort kristallin². Jedoch weisen solche Schichten einen hohen Gehalt an Störungen auf, deren Ausscheidung sich über ein weites Temperaturgebiet erstreckt (vgl. Fig. 7). An abschreckend kondensierten Cu-Schichten haben MÖNCH und SANDER⁷ von 20 bis 60° K Fehlordnungsenergie und Widerstandsverlauf gemessen. Die Ergebnisse dieser Arbeit seien hier kurz wiederholt: Die ausgeschiedene Fehlordnung wird durch den Quotienten $\Delta E/\Delta\rho$ aus gemessener Wärmetönung und Restwiderstandsabnahme charakterisiert, da dieser Wert im Gegensatz zu den Absolutwerten ΔE und $\Delta\rho$ unabhängig von der Anzahl der ausgeschiedenen Störungen sein sollte. Der Vergleich mit Messungen der Fehlordnungsenergie und der Restwiderstandsabnahme an mit energiereichen Teilchen bestrahltem Cu im gleichen Temperaturgebiet ergibt, daß der für abschreckend kondensierte Schichten erhaltene Wert $\Delta E/\Delta\rho$ gut mit dem an neutronenbestrahltem Cu gemessenen Wert^{19, 20} übereinstimmt. Für die Erholung der Schichten in diesem Temperaturgebiet wird folgendes Modell vorgeschlagen. Nach dem Aufdampfen hat man schon kleine geordnete Bereiche und dazwischen stark fehlgeordnetes Material. Diese fehlgeordneten Atome kristallisieren beim Anlassen an die schon vorhandenen Kristallite an.

¹⁸ ROLL, A., u. H. MOTZ: Z. Metallkde. **48**, 272 (1957).

¹⁹ BLEWITT, T. H., R. R. COLTMAN and C. E. KLABUNDE: Phys. Rev. Letters **3**, 132 (1959).

²⁰ BLEWITT, T. H., R. R. COLTMAN, C. E. KLABUNDE and T. S. NOGGLE: J. Appl. Phys. **28**, 639 (1957).

Im folgenden soll diskutiert werden, ob die Messungen an den reinen Metallen Au, Pb und Sn sich auch mit dieser Modellvorstellung beschreiben lassen. Zu diesem Zweck wird zunächst wieder der aus gemessener Fehlordnungsenergie und Restwiderstandsabnahme gebildete Quotient $\Delta E/\Delta \varrho$ betrachtet. Für Au und Pb ergibt sich wie auch früher für Cu von 20 bis 60° K ein konstanter Wert. In Fig. 6 ist der aus mehreren Messungen gemittelte Verlauf von $\Delta E/\Delta \varrho$ für Sn aufgetragen. Bis etwa 40° K hat $\Delta E/\Delta \varrho$ einen konstanten Wert, der dann zu höheren Temperaturen hin langsam abnimmt. In der Tabelle 2 sind die $\Delta E/\Delta \varrho$ -

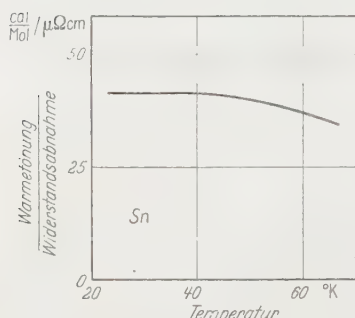


Fig. 6. Wärmetönung pro Restwiderstandsabnahme für abschreckend kondensierte Zinnschichten

Werte für die Temperaturbereiche eingetragen, in denen sie einen konstanten Verlauf zeigen (Spalte 2). In die Tabelle mitaufgenommen wird auch der Wert $Q_{ak}/\Delta \varrho$ für die Kristallisation des Sn in den Sn-Schichten mit Cu-Zusatz. Der Zusammenstellung entnimmt man, daß die $\Delta E/\Delta \varrho$ -Werte von 120 bis 33 $\frac{\text{cal}}{\text{Mol}}/\mu\Omega\text{cm}$ für diese Metalle variieren. Jedoch weichen die Werte für reines Sn und Sn + 10 Atom-% Cu nur wenig voneinander ab. Man kann deshalb annehmen, daß es sich bei diesen

Schichten um den gleichen Erholungsprozeß handelt, nämlich die an den Sn-Schichten mit Cu-Zusatz beobachtete Kristallisation. Dieses Ergebnis entspricht der von MÖNCH und SANDER vorgeschlagenen Modellvorstellung für die Erholung abschreckend kondensierter Schichten

Tabelle 2

1	2	3	4
Metall	$\frac{\Delta E}{\Delta \varrho}$ $\left(\frac{\text{cal}}{\text{Mol}}/\mu\Omega\text{cm}\right)$	$\frac{\Delta H_s}{\Delta \varrho_s}$ $\left(\frac{\text{cal}}{\text{Mol}}/\mu\Omega\text{cm}\right)$	$\frac{\Delta E}{\Delta \varrho} / \frac{\Delta H_s}{\Delta \varrho_s}$
Cu	120	280	0,43
Au	72	175	0,41
Pb	38	24	1,60
Sn	41	67	0,62
Sn + 10 At.-% Cu	33	67	0,50

in diesem Temperaturbereich. Die bei der Kristallisation der amorphen Sn-Schichten beobachteten Wärmetönungen und Restwiderstandsabnahmen konnten direkt mit den entsprechenden Werten beim Erstarren einer Sn-Schmelze verglichen werden. Um diesen Vergleich auch hier durchzuführen, sind in Spalte 3 der Tabelle 2 die Quotienten aus den Schmelzenthalpien ΔH_s ¹³ und den Widerstandsänderungen $\Delta \varrho_s$ beim

Schmelzen²¹ eingetragen. Das in Spalte 4 gebildete Verhältnis zeigt, daß ebenso wie für Schichten aus Sn+10 Atom-% Cu und reinem Sn der $\Delta E/\Delta \varrho$ -Wert auch für Cu- und Au-Schichten etwa gleich der Hälfte des Quotienten $\Delta H_s/\Delta \varrho_s$ ist. Jedoch fällt das Pb aus dieser Regel heraus. Im Vergleich mit der Restwiderstandsabnahme bei der Kristallisation amorpher Sn-Schichten ist vorher (S. 237) der Widerstandsanstieg beim Schmelzen von Sn der dabei auftretenden diskontinuierlichen Erhöhung der Fehlordnung zugeordnet worden. Der in Spalte 4 der Tabelle 2 durchgeführte Vergleich zeigt, daß diese Deutung offenbar in erster Näherung für Cu, Au und Sn zu gelten scheint, nicht jedoch für Pb.

Zusammenfassend kann man sagen: Der Vergleich der $\Delta E/\Delta \varrho$ -Werte für die Cu-, Au- und Sn-Schichten mit dem gleichen Wert für die Sn-Schichten mit Cu-Zusatz und den Quotienten $\Delta H_s/\Delta \varrho_s$ für diese Metalle ergibt, daß sich die Erholung abschreckend kondensierter Schichten in diesem Temperaturbereich gut mit der obigen Modellvorstellung beschreiben läßt.

Bei der Bestimmung des Quotienten $\Delta E/\Delta \varrho$ für die hier betrachteten Metalle ergibt sich, daß die Werte für Cu, Au und Pb von 20 bis 60° K konstant sind, während bei Sn nur bis etwa 40° K ein konstanter Quotient $\Delta E/\Delta \varrho$ gefunden wird. Wenn man diesen Wert als charakteristisch für die ausgeschiedene Fehlordnung ansieht, könnte die langsame Abnahme des Quotienten $\Delta E/\Delta \varrho$ bei Sn oberhalb von 40° K dadurch gedeutet werden, daß in diesem Temperaturbereich der Prozeß der Ausscheidung von Fehlordnung sich ändert. Nach dem obigen Bilde sollte also bei dieser Temperatur die Kristallisation des stark fehlgeordneten Materials an die schon beim Aufdampfen entstandenen Kristallite im wesentlichen abgeschlossen sein. Da wegen der abnehmenden Empfindlichkeit des Kalorimeters nicht über 65° K hinaus gemessen werden kann, möchte man die entsprechenden Temperaturen für die Cu-, Au- und Pb-Schichten gerne abschätzen. Zu diesem Zweck sei der Widerstandsverlauf abschreckend kondensierter Schichten reiner Metalle beim Anlassen näher betrachtet. Alle bisher untersuchten Metalle zeigen dabei ein ähnliches Verhalten³. Nach dem Aufdampfen haben die Schichten einen hohen Widerstand, der bei Temperaturerhöhung irreversibel abnimmt und bei einer für das betreffende Material charakteristischen Temperatur ein Minimum hat. Bei dieser Temperatur sind die Gitterstörungen so weit abgebaut, daß der thermische Widerstand zu überwiegen beginnt. Auf Grund ihrer Untersuchungen haben BUCKEL und HILSCH³ — und schon früher SUHRMANN und SCHNACKENBERG²² — einen Zusammenhang zwischen der Temperatur, bei der dieses Minimum auftritt, und der Debye-Temperatur vermutet. Jedoch haben Au-

²¹ LANDOLT-BÖRNSTEIN, Bd. II, 6. Berlin 1959.

²² SUHRMANN, R., u. H. SCHNACKENBERG: Z. Physik **119**, 287 (1942).

und Cu-Schichten dieses Widerstandsminimum etwa bei Zimmertemperatur, während ihre Debye-Temperaturen sehr verschieden sind (Au: $\approx 164^\circ \text{K}$, Cu: $\approx 315^\circ \text{K}$). Beide Metalle haben aber fast gleiche Schmelztemperaturen (Au: 1336°K , Cu: 1357°K). Aus diesem Grunde wird versucht, die Widerstandskurven über der mit der Schmelztemperatur normierten Anlaßtemperatur aufzutragen. In Fig. 7 ist über der so reduzierten Anlaßtemperatur T/T_s als Maß für die in den Schichten noch vor-

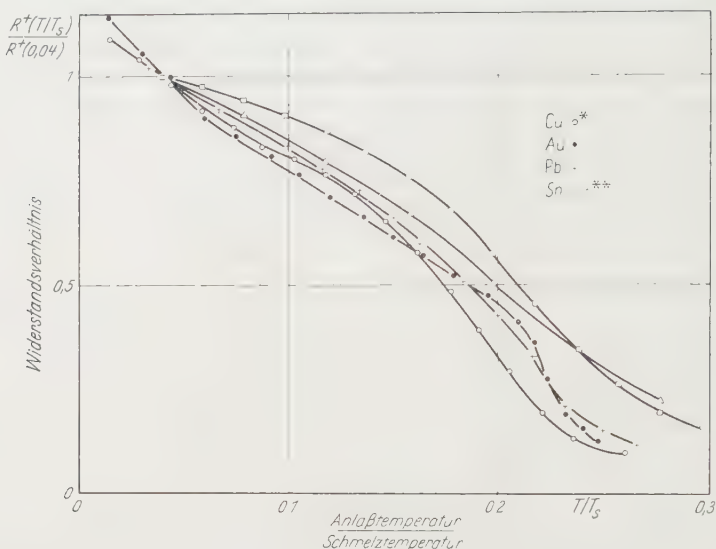


Fig. 7. Widerstandsverhältnis $R^+(T/T_s)/R^+(0,04)$ für abschreckend kondensierte Cu-, Au-, Pb- und Sn-Schichten. Es sind $R^+(T/T_s)$ und $R^+(0,04)$ die bei 20°K verbliebenen Restwiderstände nach dem Anlassen auf die Temperatur T , bzw. $T = 0,04 \cdot T_s$ (T_s : Schmelztemperatur)

handenen Störungen der bei 20°K verbliebene Restwiderstand dargestellt. Der Widerstand bei 20°K wird nach dem in den Fig. 2 bis 4 angewandten Verfahren ermittelt. Dabei sind diese Werte mit dem bei der Temperatur $T/T_s = 0,04$ vorhandenen Restwiderstand normiert. Es zeigt sich, daß die in dieser Weise normierten Widerstandskurven einen fast gleichen Verlauf haben. Die Abweichungen sind im wesentlichen durch etwas verschiedene Aufwärmgeschwindigkeiten und die jeweiligen Aufdampfbedingungen verursacht. Einen besonders starken Einfluß hat die Aufdampftemperatur; dies ist aus den für zwei Sn-Schichten gezeigten Beispielen zu ersehen, die bei $4,2$ und 10°K kondensiert worden sind.

Als Ergebnis dieser Auftragung des Widerstandsverlaufes über der mit der Schmelztemperatur normierten Anlaßtemperatur ergibt sich, daß in abschreckend kondensierten Schichten bei gleichen reduzierten Temperaturen T/T_s ähnliche Schichtzustände vorliegen. Einen Hin-

* Werte aus: MÖNCH und SANDER⁷.

** Werte aus: BUCKEL und HILSCH³.

weis auf diese Tatsache findet man bei BÜLOW und BUCKEL², die ihre Ergebnisse der Elektronenbeugung an abschreckend kondensierten Metallschichten mit den Schmelzenthalpien verglichen haben. Es gilt nämlich für die meisten Metalle die Regel: $\Delta H_s \approx R \cdot T_s$ ²³.

Die Erholung der abschreckend kondensierten Schichten ist durch die Beweglichkeit der fehlgeordneten Atome bestimmt. Für die Selbstdiffusion in Metallen haben DIENES²⁴ und ZENER²⁵ gezeigt, daß der Logarithmus des temperaturunabhängigen Anteils des Diffusionskoeffizienten ($\ln D_0$) proportional zu $1/T_s$ ist. Deshalb erscheint es plausibel, daß bei gleichen reduzierten Temperaturen T/T_s in Schichten verschiedener Metalle vergleichbare Schichtzustände vorliegen.

Damit ist es nun möglich, auch für die Cu-, Au- und Pb-Schichten die Temperatur abzuschätzen, bei der im obigen Bilde die Kristallisation der stark fehlgeordneten Atome an die beim Aufdampfen entstandenen

Kristallite im wesentlichen abgeschlossen ist. Für Sn ergibt sich diese Temperatur aus dem $\Delta E/\Delta \varrho$ -Verlauf (Fig. 6) zu 40° K; dies entspricht einer reduzierten Temperatur $T/T_s = 0,08$. Das bedeutet für Cu und Au etwa 110° K, für Pb etwa 50° K. Diese Abschätzung ist jedoch nur sehr grob; so stimmen z. B. die mit T_s reduzierten Kondensationstemperaturen nicht überein, da alle hier untersuchten Metalle bei 10° K erzeugt werden.

Mit Hilfe dieser Temperaturen soll nun der Anteil der Schichtsubstanz abgeschätzt werden, der insgesamt an dem vorgeschlagenen Erholungsprozeß beteiligt ist. Bei der Kristallisation der amorphen Schichten wird etwa die halbe Schmelzwärme frei. Berücksichtigt man dieses Ergebnis, so ergibt sich aus den gemessenen Wärmetönungen an abschreckend kondensierten Schichten (Tabelle 3, Spalte 2), daß in den betreffenden Temperaturbereichen etwa 12 bis 24% der Schichtsubstanz (Tabelle 3, Spalte 4) an die beim Aufdampfen entstandenen Kristallite ankristallisieren. Nach dem vorher Gesagten soll sich dieser Prozeß von der Aufdampftemperatur bis zu der $T/T_s = 0,08$ entsprechenden Temperatur erstrecken. Für Cu und Au mit den tiefsten reduzierten Kondensationstemperaturen ergibt sich damit, daß in dem oben angegebenen Bild etwa 30% der Schichtsubstanz in stark fehlgeordne-

Tabelle 3

1	2	3	4
Metall	$\frac{\Delta E}{\text{(kcal/Mol)}}$	$\frac{\Delta H_s}{\text{(kcal/Mol)}}$	$\frac{\Delta E}{\Delta H_s/2}$
Cu	0,22	3,11	0,14
Au	0,21	3,03	0,14
Pb	0,15	1,22	0,24
Sn	0,10	1,69	0,12

²³ FOWLER, R., and E. A. GUGGENHEIM: Statistical Thermodynamics. Cambridge 1952.

²⁴ DIENES, G. J.: J. Appl. Phys. **21**, 1189 (1950).

²⁵ ZENER, C.: Imperfections in Nearly Perfect Crystals (Herausg.: W. SHOCKLEY. New York 1952).

tem Zustand zwischen den beim Aufdampfen entstandenen kleinen wesentlich geordneteren Bereichen vorliegen.

Es soll an dieser Stelle noch einmal betont werden, daß das vorgeschlagene Modell für die Erholung abschreckend kondensierter Schichten im Tieftemperaturbereich sehr stark vereinfacht ist. Tatsächlich wird in den Schichten ein allmählicher Übergang zwischen gut und schlecht geordneten Bereichen vorliegen. Die im Vorangegangenen durchgeführten Abschätzungen können jedoch einen guten Anhalt für den sehr großen Gehalt an Störungen geben, der in den abschreckend kondensierten Schichten vorhanden ist.

Zum Schluß dieser Arbeit sollen die Ergebnisse an Cu-⁷ und Au-Schichten noch mit einer neueren Arbeit von BORELIUS²⁶ verglichen werden. Zu diesem Zweck sei diese Arbeit ganz kurz skizziert. Unter der Annahme, daß bei höheren Temperaturen der Energieinhalt eines festen Körpers $3RT$ (R Gaskonstante) beträgt, versucht BORELIUS durch die Analyse der gemessenen spezifischen Wärmen von Cu, Au, Ag und Al Aussagen über die im thermischen Gleichgewicht vorhandenen Gitterstörungen zu gewinnen. Das Ergebnis ist, daß der Energieinhalt der betreffenden Metalle von etwa 400° K an exponentiell über den Wert $3RT$ hinaus ansteigt. Aus diesem zusätzlichen Energieinhalt kann er nun zwei Anteile mit verschiedener Bildungsenergie separieren. Einen Anteil kann BORELIUS auf Grund der bekannten Bildungsenergien den Gitterleerstellen zuordnen, jedoch bleibt die Natur der anderen Gitterfehler, die er „primäre Defekte“ nennt, bisher unbekannt. Kalorische Experimente von ÅSTRÖM²⁷ haben ergeben, daß die Aktivierungsenergie dieser „primären Defekte“ etwa 0,05 eV beträgt. Sie können also bei den bekannten Abschreckexperimenten an dünnen Drähten²⁸ nicht eingefroren werden. Jedoch sollte es möglich sein, Defekte dieser Aktivierungsenergie in abschreckend kondensierten Schichten einzufrieren. Es ist vorher diskutiert worden, daß in solchen Cu- und Au-Schichten von 20 bis etwa 100° K ein einheitlicher Erholungsprozeß vorliegt. Aus den bekannten Wärmetönungen ΔE (Tabelle 3, Spalte 2) errechnet man insgesamt etwa 440 cal/Mol für den Bereich von 20 bis 100° K. BORELIUS gibt nun an, daß die „primären Defekte“ am Schmelzpunkt von Cu und Au einen zusätzlichen Energieinhalt von 450 cal/Mol bedingen. Diese Übereinstimmung legt es nahe, diese „primären Defekte“ von BORELIUS in ähnlicher Weise zu deuten wie die in den abschreckend kondensierten Schichten von 20 bis 100° K ausgeschiedene Fehlordnung.

Meinem verehrten Lehrer, Herrn Professor Dr. R. HILSCH, möchte ich an dieser Stelle für viele anregende Diskussionen und Ratschläge danken. Ebenfalls danke ich Herrn Dr. W. SANDER für zahlreiche wertvolle Hinweise und Diskussionen.

²⁶ BORELIUS, G.: Ark. Fysik **15**, 65 (1958).

²⁷ ÅSTRÖM, H. U.: Ark. Fysik **14**, 263 (1956).

²⁸ Vgl. z. B. H. G. VAN BUEREN, Imperfections in Crystals. Amsterdam 1960.

Aus dem Institut für Technische Physik der Technischen Hochschule Darmstadt

Spektrum, Zeeman-Effekt und Elektronenterme des dreiwertigen Holmiums in kristallinen Salzen

Von

I. GROHMANN, K. H. HELLWEGE und H. G. KAHLE

Mit 7 Figuren im Text

(Eingegangen am 26. April 1961)

Das sichtbare Absorptionsspektrum des Ho^{3+} -Ions im hexagonalen Äthylsulfat, im triklinen Nitrat und im monoklinen wasserhaltigen Chlorid und sein Zeeman-Effekt im Äthylsulfat werden bei tiefen Temperaturen aufgenommen und gedeutet. Dabei wird die frühere Analyse des Chlorid-Spektrums in einigen Punkten korrigiert. Die J -Werte und die Landéschen g -Faktoren aller untersuchten angeregten Elektronenterme werden bestimmt.

I. Einleitung

Das Absorptionsspektrum des dreiwertigen Holmiums in kristallinen Salzen ist bereits mehrere Male aufgenommen^{1–4} und in Teilen von einem von uns⁴ früher analysiert worden. Diese Analyse mußte jedoch von vornherein als unsicher gelten, da bei den früheren Experimenten keine genügend tiefen Temperaturen und vor allem kein Magnetfeld zur Verfügung standen.

Es wurde daher das sichtbare Absorptionsspektrum einschließlich seines Zeeman-Effektes von drei kristallinen Ho-Salzen bei tiefen Temperaturen mit großer Dispersion neu aufgenommen. Diese Untersuchungen ergaben, daß die frühere Analyse tatsächlich in einigen Punkten revidiert werden muß. Der untersuchte Spektralbereich von $15\,500$ bis $22\,500\text{ cm}^{-1}$ umfaßt die Gruppen D bis I (Bezeichnung wie in ³), deren Wellenzahlen (ohne die relativ kleine Kristallfeldaufspaltung) dem Termschema Fig. 1 zu entnehmen sind. In der vorliegenden Arbeit werden die

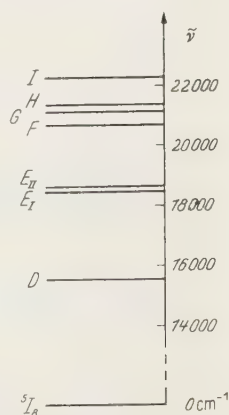


Fig. 1. Schwerpunkte der Terme des Ho^{3+} -Ions zwischen $14\,000$ und $23\,000\text{ cm}^{-1}$

¹ GOBRECHT, H.: Ann. Phys. (5) **28**, 673 (1937); (5) **31**, 755 (1938).

² MEEHAN, E. J., and G. C. NUTTING: J. Chem. Phys. **7**, 1002 (1939).

³ SEVERIN, H.: Z. Physik **125**, 455 (1949).

⁴ KAHLE, H. G.: Z. Physik **145**, 347 (1956).

experimentellen Ergebnisse und ihre theoretische Analyse behandelt. In den folgenden Arbeiten⁵ werden die experimentell gefundenen Elektronenterme mit den theoretisch möglichen Termen des freien Holmium-Ions verglichen.

II. Theoretische Hilfsmittel

1. Äthylsulfat. Die Äthylsulfate $\text{SE}(\text{C}_2\text{H}_5\text{SO}_4)_3 \cdot 9 \text{ H}_2\text{O}$ mit $\text{SE} = \text{Ho}$ und (Y, Ho) bilden hexagonale Kristalle, in denen die SE-Ionen auf Gitterplätzen der Symmetrie C_{3h} , in Näherung sogar D_{3h} sitzen⁶. Wie die folgenden Untersuchungen zeigen, reicht das vorwiegende Kristallfeld der Symmetrie D_{3h} völlig zur Deutung der bei normalen Kristalldicken gewonnenen Spektren aus; der überlagerte schwache Anteil der Symmetrie C_{3h} kann vernachlässigt werden.

In einem Kristallfeld der Symmetrie D_{3h} spaltet jeder durch den Wert der Quantenzahl J gekennzeichnete Term des freien Ho-Ions auf in eine Reihe von Kristallfeld-Komponenten, die durch die Werte der Kristallquantenzahlen $\bar{\mu} = 0, \pm 1, \pm 2, 3$ und $\nu = 0, 1$ charakterisiert werden (ausführliche Darstellung in ⁷). Die zu $\bar{\mu} = \pm 1$ und $\bar{\mu} = \pm 2$ gehörenden Komponenten sind zweifach entartet, bei ihnen ist ν nicht definiert; die übrigen Komponenten sind einfach.

Für strahlende Übergänge zwischen zwei Kristallfeld-Komponenten i und k gelten die folgenden Auswahlregeln: für *elektrische Dipolstrahlung* (P = elektrisches Dipolmoment, z = Kristallachse)

$$\left. \begin{array}{ll} s\text{-Übergang: } (P_x \pm i P_y)_{ik} \neq 0 & \text{nur, wenn } \Delta\bar{\mu} = \pm 2, \pm 4 \text{ ist,} \\ p\text{-Übergang: } (P_z)_{ik} \neq 0 & \text{nur, wenn } \Delta\bar{\mu} = \pm 3 \\ & \text{und } \Delta\nu = 0 \text{ ist;} \end{array} \right\} \quad (1)$$

für die Quantenzahl J gelten im Kristall keine Auswahlregeln mehr; für *magnetische Dipolstrahlung* (M = magnetisches Dipolmoment)

$$\left. \begin{array}{ll} \sigma\text{-Übergang: } (M_x \pm i M_y)_{ik} \neq 0 & \text{nur, wenn } \Delta\bar{\mu} = \pm 1, \pm 5 \text{ ist,} \\ \pi\text{-Übergang: } (M_z)_{ik} \neq 0 & \text{nur, wenn } \Delta\bar{\mu} = 0 \\ & \text{und } \Delta\nu = \pm 1 \text{ ist;} \end{array} \right\} \quad (2)$$

ferner die Auswahlregel

$$\Delta J = 0, \pm 1, \quad \text{außer } J = 0 \rightarrow J = 0. \quad (3)$$

In einem Kristallfeld der Symmetrie C_{3h} wäre die Kristallquantenzahl ν nicht definiert; Auswahlregeln für ν würden daher nicht wirksam sein.

⁵ HÜFNER, S.: Z. Physik **164**, 257, 269 (1961).

⁶ KETELAAR, J. A. A.: Physica, Haag **4**, 619 (1937).

⁷ HELLWEGE, K. H.: Ann. Phys. (6) **4**, 95, 143, 357 (1948).

Bei Anlegen eines Magnetfeldes spalten die zweifach entarteten Kristallfeld-Komponenten im allgemeinen auf, und zwar bei achsenparallelem Magnetfeld $\vec{H} \parallel z$ linear mit dem Magnetfeld (bei $J > 3$ mit zusätzlichem nichtlinearen Anteil), bei achsensenkrechttem Magnetfeld $\vec{H} \perp z$ nur nichtlinear; die einfachen Kristallfeld-Komponenten werden höchstens nichtlinear verschoben.

Die Aufspaltung der Terme mit $J \leq 2$ durch ein Kristallfeld der Symmetrie D_{3h} und ein äußeres Magnetfeld wurde in früheren Arbeiten berechnet und durch die Kristallfeld-Matrixelemente $K_{MM'}$ und den Landéschen g -Faktor des Terms ausgedrückt^{8,9}. Für einen Term mit $J = 2$ im achsensenkrechten Magnetfeld $\vec{H} \perp z$ wurden Näherungslösungen angegeben, bei denen nur quadratische Glieder in der Magnetfeldstärke H berücksichtigt sind⁸; bei Berücksichtigung auch der bi-quadratischen Glieder erhält man folgende Ausdrücke für die Energien der Termkomponenten:

$$\left. \begin{aligned} W_0 &= K_{00} + \frac{3C^2}{A} - \frac{9C^4}{A^3} + \frac{3C^4}{A^2(A+B)} \\ W_{+1} &= K_{11} + \frac{C^2}{B} - \frac{C^4}{B^3} \\ W_{-1} &= K_{11} + \frac{C^2}{B} - \frac{3C^2}{A} - \frac{C^4}{B^3} + \frac{3C^4}{AB^2} - \frac{3C^4}{A^2B} + \frac{9C^4}{A^3} \\ W_{+2} &= K_{22} - \frac{C^2}{B} + \frac{C^4}{B^3} - \frac{3C^4}{B^2(A+B)} \\ W_{-2} &= K_{22} - \frac{C^2}{B} + \frac{C^4}{B^3} \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

mit

$$A = K_{00} - K_{11}; \quad B = K_{11} - K_{22}; \quad C = g\mu_B H. \quad (5)$$

Für $J \geq 3$ ergeben sich sehr unhandliche Ausdrücke für die Energie der Termkomponenten. Es ist aber auch dann ohne Schwierigkeiten möglich, aus dem linearen Aufspaltungsfaktor s der Kristallfeld-Komponenten im achsenparallelen Magnetfeld den g -Faktor des gesamten Terms zu bestimmen (siehe¹⁰).

Das Ho^{3+} -Ion besitzt im Grundzustand ein großes magnetisches Moment. Die Folge davon ist, daß am Ort eines bestimmten Ions nicht das von außen angelegte Magnetfeld H_{ext} herrscht, sondern das durch die Dipolfelder der Nachbarionen modifizierte, lokale Feld H_{loc} . Die Stärke des Feldes H_{loc} wird nach einem von DANIELS¹¹ und GRAMBERG¹⁰ angegebenen Verfahren berechnet.

⁸ HELLEWEGE, K.H., U. JOHNSEN, H.G. KAHLE u. G. SCHAAK: Z. Physik **148**, 112 (1957).

⁹ HELLEWEGE, K.H., G. HESS u. H.G. KAHLE: Z. Physik **159**, 333 (1960).

¹⁰ GRAMBERG, G.: Z. Physik **159**, 125 (1960).

¹¹ DANIELS, J.M.: Proc. Phys. Soc. Lond. A **66**, 673 (1953).

2. Nitrat. Das Nitrat $\text{SE}(\text{NO}_3)_3 \cdot x \text{H}_2\text{O}$ mit $\text{SE} = (\text{Y}, \text{Ho})$ (10:1) und mit wahrscheinlich $x=6$ bildet triklin Kristalle. Die Punktsymmetrie am Ort der Ho-Ionen ist daher ebenfalls triklin. Alle Kristallfeldkomponenten sind einfach und durch den Wert $\mu=0$ der Kristallquantenzahl μ gekennzeichnet. Für elektrische Dipolstrahlung gelten keine Übergangsverbote, für magnetische Dipolstrahlung nur die Auswahlregel (3).

3. Chlorid. Die theoretischen Hilfsmittel für die Deutung des Spektrums im Chlorid sind bereits in der früheren Arbeit⁴ angegeben worden; sie sollen hier nicht wiederholt werden.

III. Experimentelles

Es wurden folgende Substanzen als Einkristalle untersucht: Die isomorphen hexagonalen Äthylsulfate $\text{Ho}(\text{C}_2\text{H}_5\text{SO}_4)_3 \cdot 9 \text{H}_2\text{O}$ und $(\text{Y}, \text{Ho})(\text{C}_2\text{H}_5\text{SO}_4)_3 \cdot 9 \text{H}_2\text{O}$ ($\text{Y}:\text{Ho} = 10:1$), das triklin Nitrat $(\text{Y}, \text{Ho})(\text{NO}_3)_3 \cdot x \text{H}_2\text{O}$ ($\text{Y}:\text{Ho} = 10:1$) mit wahrscheinlich $x=6$ und die isomorphen monoklinen Chloride $\text{HoCl}_3 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ und $(\text{Y}, \text{Ho})\text{Cl}_3 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ ($\text{Y}:\text{Ho} = 10:1$).

Das sichtbare Absorptionsspektrum des Ho^{3+} wurde mit polarisiertem Licht in der bekannten spektroskopischen Anordnung⁸ photographiert, wobei sich die Kristalle auf der Temperatur des flüssigen bzw. abgepumpten flüssigen Heliums oder der flüssigen bzw. abgepumpten flüssigen Luft in homogenen Magnetfeldern bis zu 28000 Oe befanden.

Beim Betrachten der Absorptionsspektren verschiedener Nitrat-Kristalle, die aber aus derselben Lösung gezogen wurden, stellt man sofort fest, daß die Kristalle zwei völlig verschiedene Spektren geben können, die sich bei 4,2 °K allein schon durch die Anzahl der Linien in jeder einzelnen Gruppe deutlich unterscheiden (vgl. Fig. 3). Es muß also offensichtlich zwei Modifikationen des Nitrats (vielleicht mit verschiedenem Kristallwasser-Gehalt) geben, in denen die Ho-Ionen auf Gitterplätzen mit völlig verschiedener Umgebung sitzen. Die beiden Modifikationen werden im folgenden als Modif. 1 und Modif. 2 unterschieden. Wir vermuten, daß die Bildung der einen oder anderen Modifikation lediglich durch den Säuregrad bei der Kristallisation bestimmt wird. Genauere Untersuchungen darüber und Untersuchungen eventueller Unterschiede im äußeren Habitus der Kristalle haben wir bisher nicht durchgeführt.

IV. Experimentelle Ergebnisse und ihre Deutung

1. Äthylsulfat. a) *Der Grundterm* 5I_8 . In den Spektren der verschiedenen Gruppen tritt bei 4,2 °K sehr häufig die Wellenzahldifferenz $6,01 \text{ cm}^{-1}$ zwischen zwei Linien auf. Daraus folgt, daß bei 4,2 °K im

Grundterm 5I_8 noch zwei Komponenten besetzt sind, und zwar die zweifach entartete Komponente I mit der Kristallquantenzahl $\bar{\mu} = \pm 1$ bei 0 cm^{-1} und die einfache Komponente II mit $\bar{\mu} = 0, \nu = 0$ bei $(6,01 \pm 0,02) \text{ cm}^{-1}$. Die Werte der Kristallquantenzahlen folgen über die Polarisierung der Linien und die Auswahlregeln (1), (2) eindeutig aus den Spektren, z. B. der Gruppe G, Fig. 4 und Abschnitt IV, 1b.

Mit steigender Temperatur rückt die Komponente II zu niedrigeren Energien; sie liegt bei 58°K bei $(4,83 \pm 0,20) \text{ cm}^{-1}$, bei 85°K bei $(4,34 \pm 0,30) \text{ cm}^{-1}$. Außerdem erscheinen bei höheren Temperaturen weitere Linien in den Spektren, die Übergängen von höher liegenden Grundtermkomponenten entsprechen. Insgesamt konnten vier weitere Komponenten III, IV, V und VI des Grundterms 5I_8 festgelegt werden, deren Kristallquantenzahlen und deren Lage bei 58°K im Termschema, Fig. 6, angegeben sind.

Im achsenparallelen Magnetfeld $\vec{H}_{\parallel z}$ spaltet die Komponente I im Rahmen der Meßgenauigkeit streng linear auf. Dabei verschiebt sich die Komponente mit $\bar{\mu} = +1$ zu höheren Energien, wie man mit Hilfe der Auswahlregeln (1) aus dem Zeeman-Effekt der Gruppe G herleitet. Der lineare Aufspaltungsfaktor $s_{I\parallel}$ wird nach Korrektur des Magnetfeldes infolge der Dipolfelder der Gitternachbarn (Dipol-Wechselwirkung, siehe ¹⁰) für das unverdünnte und für das mit Y verdünnte Äthylsulfat gleich groß gemessen, und zwar gleich

$$s_{I\parallel} = 7,73 \pm 0,05. \quad (6)$$

Die Stärke des Einflusses der Dipol-Wechselwirkung mit den Gitternachbarn ergibt sich aus Fig. 2, in der der gemessene Zeeman-Effekt der beiden Grundtermkomponenten I und II einmal über dem unkorrigierten äußeren Feld H_{ext} , das andere Mal über dem korrigierten Feld H_{loc} aufgetragen ist. Die Kurven für das unverdünnte und das verdünnte Präparat unterscheiden sich nur, solange sie über H_{ext} aufgetragen werden, da bei dem verdünnten Präparat die Dipol-Wechselwirkung sehr viel kleiner ist.

Die Komponente II erfährt eine quadratische Verschiebung um

$$a_{II\parallel} = -(2,0 \pm 0,5) \cdot 10^{-9} \text{ cm}^{-1}/\text{Oe}^2 \quad (7)$$

zu niedrigeren Energien.

Für achsensenkrechtcs Magnetfeld $\vec{H}_{\perp z}$ erhält man aus dem Zeeman-Effekt der Gruppe G (Abschnitt IV, 1b) die folgende Magnetfeldabhängigkeit der Energie der Komponenten I und II

$$\Delta W_i / h c = a_{i\perp} H^2 + c_{i\perp} H^4 \quad (8)$$

mit $a_{-I\perp} = -(6,7 \pm 0,6) \cdot 10^{-9} \text{ cm}^{-1}/\text{Oe}^2$, $c_{-I\perp} = +(1,9 \pm 1,2) \cdot 10^{-18} \text{ cm}^{-1}/\text{Oe}^4$ für die eine Zeeman-Komponente von I, $a_{+I\perp} = c_{+I\perp} = 0$ für die andere Zeeman-Komponente von I und $a_{II\perp} = +(6,0 \pm 0,6) \cdot 10^{-9} \text{ cm}^{-1}/\text{Oe}^2$, $c_{II\perp} = -(2,5 \pm 1,2) \cdot 10^{-18} \text{ cm}^{-1}/\text{Oe}^4$ für die Komponente II.

Der von uns gemessene Aufspaltungsfaktor $s_{I\parallel}$ stimmt innerhalb der Meßgenauigkeit mit dem Wert $g_{\parallel} = s_{I\parallel} = 7,705 \pm 0,005$ überein, den

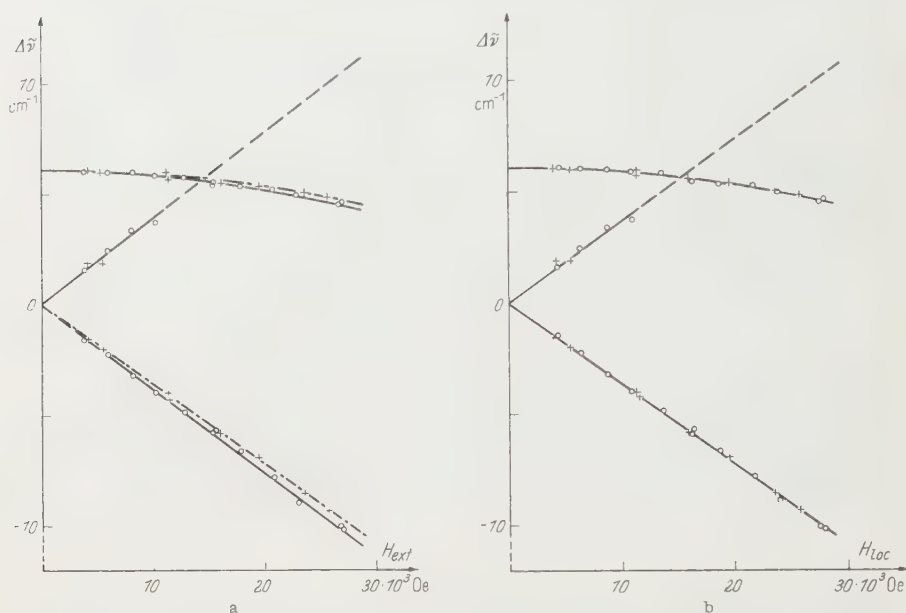


Fig. 2a u. b. Zeeman-Effekt der Grundtermkomponenten I und II des Ho-Äthylsulfats im achsenparallelen Magnetfeld. Im linken Teilbild (a) ist der Zeeman-Effekt aufgetragen über dem von außen angelegten Magnetfeld H_{ext} , im rechten Teilbild (b) über dem inneren Feld H_{loc} nach Berücksichtigung der Dipol-Wechselwirkung mit den Gitternachbarn. Es bedeuten: \circ Meßpunkte für das unverdünnte (ausgezogene Kurve), $+$ Meßpunkte für das mit Y verdünnte Ho-Äthylsulfat

BAKER und BLEANEY durch paramagnetische Resonanz am (Y, Ho)-Äthylsulfat (100:1) ermittelt haben¹².

b) *Die angeregten Terme.* Die Spektren einiger Gruppen sind in den Fig. 3, 4 und 5 wiedergegeben; Einzelheiten sind den Bildunterschriften zu entnehmen. Die Anzahl der Linien, die bei 4,2 °K in den einzelnen Gruppen des Äthylsulfats beobachtet wurden, ist in Tabelle 1 zusammengestellt, und zwar getrennt nach Übergängen, die von der Grundtermkomponente I und von der Grundtermkomponente II ausgehen (I-Übergänge und II-Übergänge), und nach der Polarisierung der Übergänge, siehe Gl. (1) und (2). Magnetische Dipolstrahlung tritt nur in Gruppe H auf (zum Teil gemischt mit elektrischer Dipolstrahlung); in den übrigen

¹² BAKER, J.M., and B. BLEANEY: Proc. Roy. Soc. Lond. A **245**, 156 (1958).

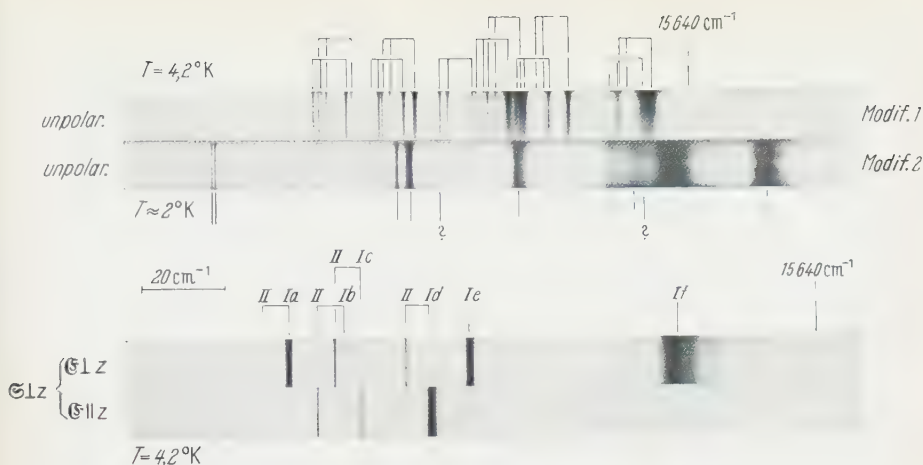


Fig. 3. Spektren der Gruppe D. Obere Spektren: Nitrat-Modifikation 1 bzw. Modifikation 2 bei $T = 4,2^\circ\text{K}$ bzw. $T \approx 2^\circ\text{K}$, mit unpolarisiertem Licht aufgenommen; Schichtdicke 1,2 mm. Untere Spektren: Äthylsulfat bei $T = 4,2^\circ\text{K}$, mit polarisiertem Licht aufgenommen; Schichtdicke 0,7 mm des Präparats Y:Ho = 10:1. Photographisches Positiv. Wellenzahlen wachsen nach rechts. Es bedeuten: \otimes Strahlvektor, \otimes elektrischer Vektor der eingestrahlten, linear polarisierten Lichtwelle, z Kristallachse. Die Deutung der Linien ist am Rand der Spektren vermerkt

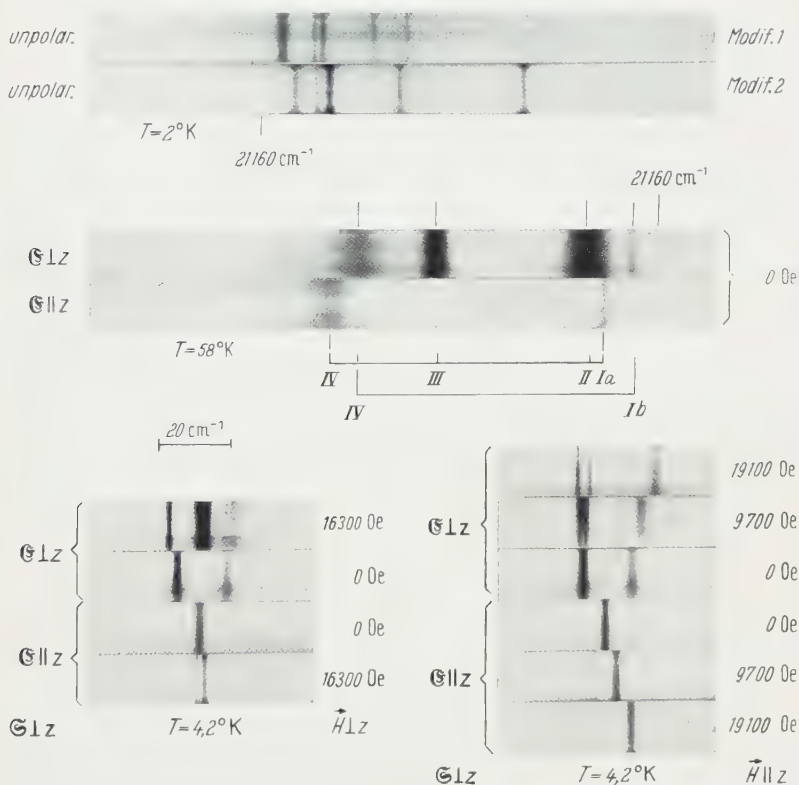


Fig. 4. Spektren und Zeeman-Effekt der Gruppe G. Oberste Spektren: Nitrat-Modifikation 1 bzw. 2 bei $T \approx 2^\circ\text{K}$; Schichtdicke 1,2 mm. Übrige Spektren: Äthylsulfat, und zwar Mitte: bei $T = 58^\circ\text{K}$; Schichtdicke 1,2 mm des unverdünnten Präparats, unten: bei $T = 4,2^\circ\text{K}$; Schichtdicke 0,8 mm des Präparats Y:Ho=10:1. Darstellung sonst wie in Fig. 3

Gruppen wird nur elektrische Dipolstrahlung absorbiert. Die in Klammern gesetzten Zahlen bedeuten Linien, die nur bei relativ großen



Fig. 5. Spektrum und Zeeman-Effekt der Gruppe *H* in Äthylsulfat bei $T = 4,2^\circ \text{K}$. Schichtdicke 0,8 mm des unverdünnten Präparats. Darstellung wie in Fig. 3. Das unterste Spektrum ist eine Ausschnittsvergrößerung des darüber stehenden Spektrums. Die Linie ganz rechts ist in 8 HFS-Komponenten aufgespalten

Schichtdicken sehr schwach beobachtet werden; ihre Intensität ist um mehrere Zehnerpotenzen kleiner als die der übrigen Linien. Sie ent-

Tabelle 1. Äthylsulfat

Gruppe	Anzahl der beobachteten Übergänge				<i>J</i> -Wert des angeregten Terms
	I-Übergänge		II-Übergänge		
	<i>p</i> bzw. σ	<i>s</i> bzw. π	<i>p</i> bzw. σ	<i>s</i> bzw. π	
<i>D</i>	2	4	1 + (1) [*]	2 + (1) [*]	5 oder 6
<i>E</i> _I	1	1	—	1	2
<i>E</i> _{II}	2	3	1 + (1) [*]	2	4
<i>F</i>	1	3	1	1	3
<i>G</i>	1	1	—	1	2
<i>H</i>	6	5	4	4	8
<i>I</i> _I	—	1	—	—	1 ? [†]

* Nur bei relativ großen Schichtdicken des unverdünnten Präparats.

† Dieser Wert ist unsicher.

sprechen Übergängen, die durch Symmetrieverringung von D_{3h} auf C_{3h} erlaubt werden. Da keineswegs alle durch diese Symmetriever-

ringerung erlaubten Übergänge beobachtet werden, reicht das vorwiegende Kristallfeld der Symmetrie D_{3h} noch völlig aus zur Deutung der bei mittleren Schichtdicken gewonnenen Spektren.

Aus der Polarisation und der Anzahl der in den einzelnen Gruppen beobachteten Linien ergeben sich mit Hilfe der Auswahlregeln (1), (2) ohne Schwierigkeiten die J -Werte der angeregten Terme, die in der letzten Spalte der Tabelle 1 angegeben sind. Der Term G mit $J = 2$ z. B. spaltet im Kristallfeld der Symmetrie D_{3h} auf in zwei zweifach entartete Komponenten mit $\bar{\mu} = \pm 2$ und $\bar{\mu} = \pm 1$, deren energetische Lage aus den Linien 2 und 3 im Spektrum der Gruppe G , Fig. 4, folgt (Komponenten a und b im Termschema, Fig. 6), und eine einfache Komponente mit $\bar{\mu} = 0$, $\nu = 0$, deren Lage mit Hilfe des achsensenkrechten Zeeman-Effektes berechnet werden kann (s. unten). Die Linie 1 der Gruppe G entspricht dem Übergang Grundtermkomponente II nach Komponente a . Mit den Auswahlregeln (1) ergeben sich dann die Werte der Kristallquantenzahlen für die Grundtermkomponenten, die bereits in Abschnitt IV, 1a angegeben sind.

Die früher⁴ angegebene Deutung der Gruppen E_I und E_{II} durch nur einen angeregten Term läßt sich nach den Ergebnissen am Äthylsulfat, wo diese beiden Gruppen relativ weit auseinanderliegen, nicht mehr halten; sie muß in der in Tabelle 1 angegebenen Weise revidiert werden. Ebenso muß vermutlich die Gruppe I durch zwei Gruppen I_I und I_{II} gedeutet werden, wobei I_I im Äthylsulfat bei 4,2 °K wahrscheinlich nur aus einer Linie besteht. Diese Aufteilung muß aber vorläufig als unsicher gelten, da die sehr breiten Linien der Gruppe I_{II} bisher nicht analysiert werden konnten.

Die gemessenen linearen Aufspaltungsfaktoren im achsenparallelen Magnetfeld $\vec{H} \parallel z$ für die zweifach entarteten Termkomponenten sind in Tabelle 2 aufgeführt. Ein positives (negatives) Vorzeichen bedeutet dabei, daß die Zeeman-Komponente mit $+\bar{\mu}$ ($-\bar{\mu}$) zu höheren Energien verschoben wird. Die Bezeichnung der Termkomponenten durch kleine Buchstaben entspricht der im Termschema, Fig. 6. Aus den Aufspaltungsfaktoren ergeben sich entweder nach Gl. (2) der Arbeit⁹ (bei kleinen J -Werten) oder nach Gl. (4) der Arbeit¹⁰ (bei großen J -Werten) die in der letzten Spalte der Tabelle 2 angegebenen Werte für den g -Faktor des betreffenden Terms.

Im achsensenkrechten Magnetfeld $\vec{H} \perp z$ treten keine linearen, sondern nur nichtlineare Zeeman-Effekte auf. Sie wurden im einzelnen nur in Gruppe G ausgewertet, wo neben quadratischen Verschiebungen zum erstenmal auch biquadratische Verschiebungen der Linien und Termkomponenten ausgemessen werden konnten. Aus dem quadratischen Anteil aller Linien ergibt sich einerseits mit dem für $\vec{H} \parallel z$ bestimmten

g -Faktor des Terms G (Tabelle 2) und mit $K_{11} - K_{22}/hc = +(7,64 \pm 0,20) \text{ cm}^{-1}$ (Abstand der Termkomponenten b und a) aus Gln. (4), (5)

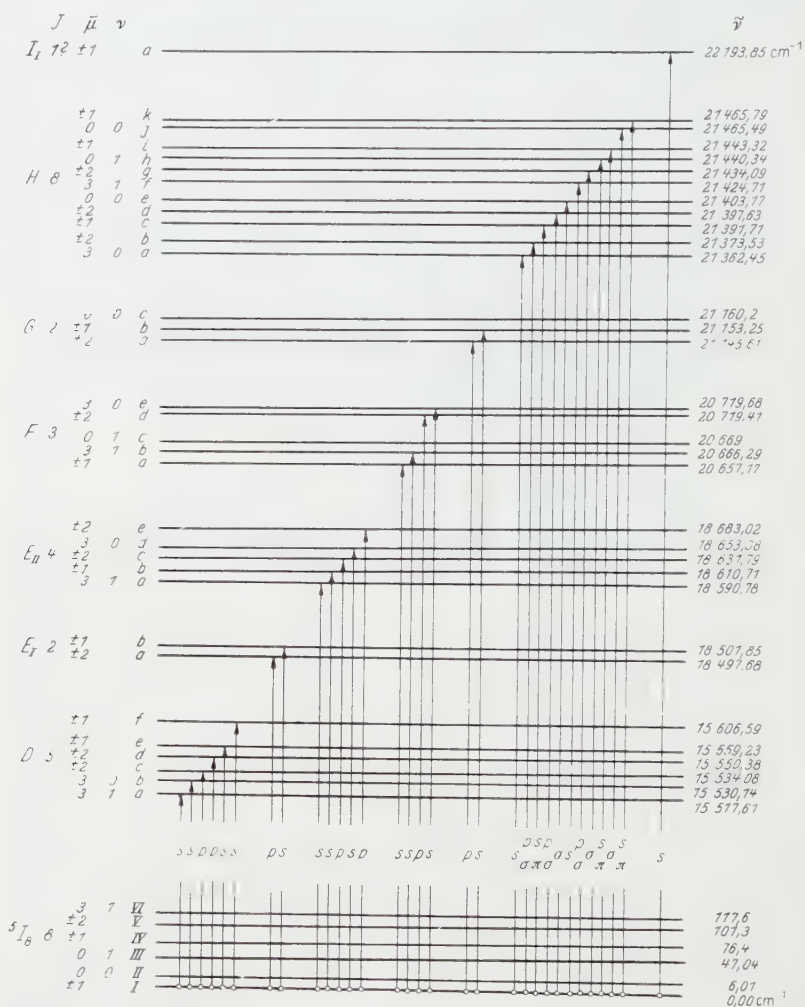


Fig. 6. Termschema des Ho^{3+} -Ions im hexagonalen Äthylsulfat bei 4,2 °K mit den Übergängen, die von der tiefsten Grundtermkomponente I ausgehen. Es bedeuten: lateinische Buchstaben p, s elektrische Dipole parallel bzw. senkrecht zur Kristallachse; griechische Buchstaben π, σ magnetische Dipole parallel bzw. senkrecht zur Kristallachse; $\bar{\mu}, \nu$ Kristallquantenzahlen; $\bar{\nu}$ Wellenzahlen der Kristallfeldkomponenten. Die Wellenzahlen der Grundtermkomponenten III bis VI und der Komponente c des Terms F gelten für 58 °K

der Abstand der Komponente c mit $\bar{\mu} = 0, \nu = 0$ von der Komponente b mit $\bar{\mu} = \pm 1$ mit relativ großen Fehlergrenzen zu

$$\frac{W_c - W_b}{hc} = \frac{K_{00} - K_{11}}{hc} = +(7 \pm 10)_3 \text{ cm}^{-1}, \quad (9)$$

andererseits der bereits in Abschnitt IV, 1a angegebene quadratische Zeeman-Effekt der Grundtermkomponenten I und II. Berechnet man mit dem Wert der Gl. (9) den biquadratischen Anteil des Zeeman-Effekts für die Komponenten des Terms G, so verbleibt der in Abschnitt IV, 1a beschriebene biquadratische Anteil für die Grundtermkomponenten I und II.

 Tabelle 2. Zeeman-Effekt $\bar{H}_{||z}$ des Äthylsulfats

Term	Termkomponente	$\bar{\mu}$	Aufspaltungsfaktor	g-Faktor
D	c	± 2	$+ (1,64 \pm 0,04)$	$\left. \begin{array}{l} g(\pm 2, H_0) = 1,34 \pm 0,05 \\ g(\pm 1, H_0) = 1,18 \pm 0,20 \end{array} \right\}$
	d	± 2	$- (4,32 \pm 0,06)$	
	e	± 1	$+ (1,33 \pm 0,04)$	$\left. \begin{array}{l} g(\pm 2, H_0) = 1,79 \pm 0,05 \\ g(\pm 1, H_0) = 1,78 \pm 0,06 \end{array} \right\}$
	f	± 1	$- (6,04 \pm 0,70)$	
E _I	a	± 2	$+ (3,58 \pm 0,10)$	$\left. \begin{array}{l} g(\pm 2, H_0) = 1,79 \pm 0,05 \\ g(\pm 1, H_0) = 1,78 \pm 0,06 \end{array} \right\}$
	b	± 1	$+ (1,78 \pm 0,06)$	
E _{II}	b	± 1	$+ (1,37 \pm 0,08)$	$\left. \begin{array}{l} g(\pm 1, H_0) = 1,37 \pm 0,08 \\ g(\pm 1, H_0) = 1,29 \pm 0,10 \\ g(\pm 2, H_0) = 1,28 \pm 0,06 \end{array} \right\}$
	c	± 2	$+ (1,27 \pm 0,10)$	
	e	± 2	? *	
F	a	± 1	$+ (1,29 \pm 0,10)$	$\left. \begin{array}{l} g(\pm 1, H_0) = 1,29 \pm 0,10 \\ g(\pm 2, H_0) = 1,28 \pm 0,06 \end{array} \right\}$
	d	± 2	$+ (2,55 \pm 0,12)$	
G	a	± 2	$+ (2,21 \pm 0,08)$	$\left. \begin{array}{l} g(\pm 2, H_0) = 1,11 \pm 0,04 \\ g(\pm 1, H_0) = 1,09 \pm 0,06 \end{array} \right\}$
	b	± 1	$+ (1,09 \pm 0,06)$	
H	b	± 2	$- (1,40 \pm 0,10)$	$\left. \begin{array}{l} g(\pm 2, H_0) = 1,07 \pm 0,07 \\ g(\pm 1, H_0) = 1,06 \pm 0,12 \\ g(\pm 1, H_0) = 1,06 \pm 0,12 \\ g(\pm 1, H_0) = 0,78 \pm 0,15 \\ g(\pm 1, H_0) = 0,78 \pm 0,15 \end{array} \right\}$
	d	± 2	$+ (7,84 \pm 0,10)$	
	g	± 2	$(0,00 \pm 0,20)$	
	c	± 1	$- (2,39 \pm 0,10)$	
	i	± 1	$- (0,19 \pm 0,10)$	
I _I	k	± 1	$+ (5,76 \pm 0,15)$	$\left. \begin{array}{l} g(\pm 1, H_0) = 0,78 \pm 0,15 \\ g(\pm 1, H_0) = 0,78 \pm 0,15 \end{array} \right\}$
	a	± 1	$+ (0,78 \pm 0,15)$	

* Wegen großer Linienbreite nicht zu messen.

c) *Kernhyperfeinstruktur (HFS)*. Über die Beobachtung der HFS im Spektrum des Ho-Äthylsulfats haben wir bereits in einer kurzen Mitteilung berichtet¹³. Die wichtigsten Ergebnisse sollen hier im Zusammenhang wiederholt werden.

Ein großer Teil der bei 4,2 °K beobachteten Absorptionslinien zeigt eine kastenartige Linienform mit steil abfallenden Flanken, die als Überlagerung mehrerer dicht nebeneinanderliegender, sehr scharfer Linien zu erklären ist. Bei einigen Absorptionslinien konnte diese Struktur im achsenparallelen Magnetfeld aufgelöst werden. Fig. 5 zeigt in der Ausschnittsvergrößerung das Spektrum, Fig. 7 die Photometerkurve einer solchen Linie, und zwar die Linie Id der Gruppe H, die sich ohne Schwierigkeiten in acht äquidistante Komponenten mit gleicher Halbwertsbreite trennen läßt. Es handelt sich also um die HFS, da das einzige stabile Isotop Ho¹⁶⁵ den Kernspin $I = 7/2$ besitzt.

¹³ GROHMANN, I., K. H. HELLWEGE u. H. G. KAHLE: Naturwissenschaften 47, 277 (1960).

Die Zusatzenergie einer zweifach entarteten Kristallfeld-Komponente im achsenparallelen Magnetfeld mit Einschluß der HFS berechnet man zweckmäßig aus dem Spin-Hamilton-Operator¹⁴

$$\mathcal{H} = g_s \mu_B H_z S_z + A S_z I_z \quad (10)$$

mit dem effektiven Spin $S = \frac{1}{2}$, $I = \frac{7}{2}$ und $g_s = 2s_{||}$. Dabei sind die Operatoren S_z und I_z in Einheiten des Planckschen \hbar ausgedrückt. Für

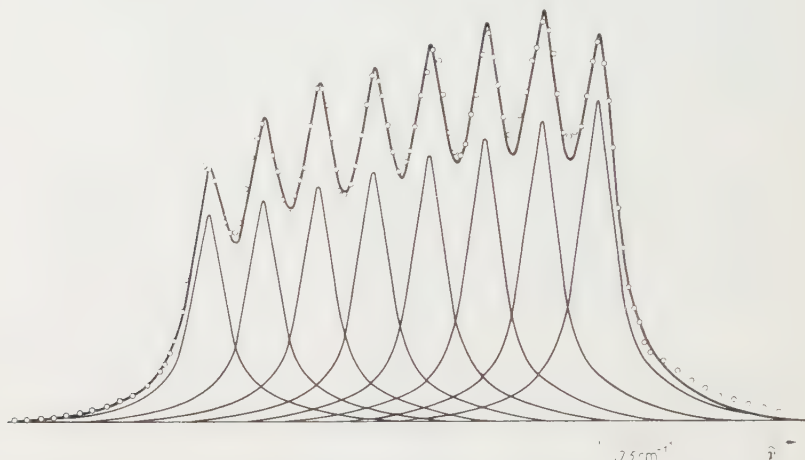


Fig. 7. Photometerkurve der Linie I_d der Gruppe H des Äthylsulfats (vgl. Fig. 5) bei 4,2 °K. Wellenzahlen wachsen nach rechts. Die Kreise entsprechen den Messungen am Photometer, die dick ausgezogene Kurve ist die Summe der einzelnen HFS-Linien

strahlende Übergänge gelten neben den Auswahlregeln (1), (2) die Auswahlregeln

$$\Delta M_I = 0 \quad (11)$$

für die z -Komponente des Kernspins. Die beobachteten Abstände der HFS-Linien ergeben sich daher als Summen der HFS-Abstände innerhalb der Zeeman-Komponente der Grundtermkomponente I und der Komponente d des Terms H . Mit unseren Werten von $s_{I||} = g_{I||}/2$ und $s_{d||} = g_d/2$, Gl. (7) und Tabelle 2, und dem durch paramagnetische Resonanz bestimmten Wert¹² $A_I = (0,3354 \pm 0,0004) \text{ cm}^{-1}$ ergibt sich aus unseren Messungen

$$A_d = (0,47 \pm 0,04) \text{ cm}^{-1} \quad (12)$$

für die Komponente d im Term H .

Aus dem Intensitätsverhältnis der einzelnen HFS-Linien in Fig. 7 folgt mit dem oben angegebenen Wert von A_I , daß die Besetzung der HFS-Komponenten in der Grundtermkomponente I einer Boltzmann-

¹⁴ BLEANEY, B., and K.W.H. STEVENS: Rep. Progr. Phys. **16**, 108 (1953).

Verteilung mit einer Temperatur von $(4,8 \pm 1,0)^\circ\text{K}$ entspricht. Das bedeutet, daß die Temperatur des Spinsystems auch während der Absorptionsversuche praktisch gleich der Temperatur des Kühlbades ist.

Die Grundtermkomponente II mit $\bar{\mu}=0$, $\nu=0$ ist einfach und besitzt infolgedessen kein magnetisches Moment und in erster Näherung auch keine HFS-Wechselwirkung. Die von dieser Komponente ausgehenden Übergänge sind daher im Spektrum leicht zu erkennen, da sie wesentlich geringere Linienbreiten besitzen als die von der zweifach entarteten Grundtermkomponente I ausgehenden Übergänge mit nicht aufgelöster HFS.

2. Nitrat. a) *Der Grundterm 5I_8 .* Im linienreicheren Spektrum der Nitrat-Modif. 1 beobachtet man bei $4,2^\circ\text{K}$ sehr häufig die Wellenzahl-differenzen $1,81\text{ cm}^{-1}$ und $5,70\text{ cm}^{-1}$ zwischen jeweils zwei Linien (vgl. Fig. 3). Es folgt daraus, daß bei $4,2^\circ\text{K}$ außer der tiefsten Grundtermkomponente I noch zwei weitere Komponenten II bei $1,81\text{ cm}^{-1}$ und III bei $7,51\text{ cm}^{-1}$ besetzt sind. Ob eine Linie einem Übergang von der Komponente I, II oder III entspricht, ließ sich meist erst aus den Aufnahmen bei abgepumptem flüssigem Helium ($\approx 2^\circ\text{K}$) feststellen. Bei der Modif. 2 ist bei $4,2^\circ\text{K}$ außer der tiefsten Grundtermkomponenten I die Komponente II bei $8,63\text{ cm}^{-1}$ schwach besetzt. Untersuchungen bei höheren Temperaturen als $4,2^\circ\text{K}$ wurden nicht durchgeführt.

b) *Die angeregten Terme.* Die in den einzelnen Gruppen der beiden Nitrat-Modifikationen beobachtete Anzahl von Linien, die Übergängen

Tabelle 3. Nitrat und Chlorid

Gruppe	Anzahl der beobachteten I-Übergänge			J-Wert des angeregten Terms
	Nitrat		Chlorid	
	Modifikation 1	Modifikation 2		
<i>D</i>	11	9 + (2) *	8 + (?) *	5
<i>E_I</i>	5	5	5	2
<i>E_{II}</i>	8 + (1) *	8 + (1) *	7 + (2) *	4
<i>F</i>	7	7	7	3
<i>G</i>	5	5	5	2
<i>H</i>	14 + (2) *	13 + (2) *	16	8
<i>I_I</i>	?	(3)	?	1 ? +

* Diese Übergänge sind sehr schwach und daher nicht eindeutig als I-Übergänge zu analysieren.

+ Dieser Wert ist unsicher.

von der Grundtermkomponente I entsprechen (I-Übergänge), ist in Tabelle 3 angegeben. Die in Klammern gesetzten Zahlen bedeuten dabei Übergänge, die nur sehr schwach absorbieren und daher nicht sicher identifiziert werden konnten. Da im Nitrat (und ebenso im Chlorid) in

jeder Gruppe $(2J+1)$ I-Übergänge erlaubt sind (J des angeregten Terms), folgen aus den angegebenen Zahlen ohne weiteres die J -Werte der angeregten Terme, letzte Spalte der Tabelle 3. Diese Werte stimmen völlig überein mit den Werten, die aus den Spektren des Ho-Äthylsulfats gewonnen wurden. Für den Term D folgt eindeutig der Wert $J=5$; der Wert $J=6$, der nach dem Äthylsulfat ebenfalls möglich war, kann jetzt ausgeschlossen werden. Die Unsicherheit in der Deutung des Terms I_1 bleibt bestehen.

3. Chlorid. Das Spektrum des Ho-Chlorids wurde bereits früher von einem von uns⁴ bei Temperaturen bis zu 14 °K hinab und ohne Verwendung eines äußeren Magnetfeldes aufgenommen und gedeutet. Diese Deutung muß nach unseren neuen Untersuchungen bei 4,2 °K in einigen Punkten korrigiert werden. Obgleich auch bei 4,2 °K noch drei Grundtermkomponenten I, II und II bei 0; 8,69 und 17,68 cm⁻¹ besetzt sind, ließen sich zufällig zusammenfallende Linien im allgemeinen durch Anlegen eines äußeren Magnetfeldes trennen. Dadurch konnten die Unsicherheiten in der früheren Analyse weitgehend beseitigt werden.

Die Anzahl der I-Übergänge, die in den einzelnen Gruppen beobachtet wurden, ist in der vierten Spalte der Tabelle 3 aufgeführt. Aus diesen Zahlen folgen, zum Teil durch Vergleich mit den Ergebnissen am Nitrat, die in der letzten Spalte der Tabelle angegebenen J -Werte der angeregten Terme. Aus der Polarisierung der Linien der Gruppen E_1 und G ergibt sich dann mit Hilfe der Auswahlregeln (1), (2) der Arbeit⁴, daß die Werte 0 und 1 der Kristallquantenzahl μ bei den einzelnen Kristallfeld-Komponenten, die im Termschema, Fig. 6 der Arbeit⁴ angegeben sind, gerade vertauscht sein müssen, d.h. es muß $\mu=0$ durch $\mu=1$ und $\mu=1$ durch $\mu=0$ ersetzt werden. Im übrigen bleiben die Ergebnisse unverändert bis auf die folgenden Fälle: Term E_1 und E_{II} wurden früher zusammen als Term E gedeutet. Die fünf tiefsten Termkomponenten von E stellen vermutlich den Term E_1 dar. Im Term E_{II} müssen die beiden Komponenten bei 18624,18 cm⁻¹ und 18656,18 cm⁻¹ als unsicher angesehen werden, sie müssen vermutlich durch zwei Komponenten bei 18639,7 cm⁻¹ mit $\mu=1$ und 18649,9 cm⁻¹ mit $\mu=0$ ersetzt werden. Im Term F ist die Komponente bei 20711,26 cm⁻¹ zu ersetzen durch eine Komponente bei 20706,53 cm⁻¹ mit $\mu=1$. Der Term G besitzt außer den drei früher gefundenen Komponenten zwei weitere Komponenten bei 21101,37 cm⁻¹ mit $\mu=1$ und bei 21145,43 cm⁻¹ mit $\mu=0$.

Die Deutung der experimentell gefundenen Terme durch die theoretischen Terme des freien Ho³⁺-Ions wird in den folgenden Arbeiten⁵ behandelt.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft danken wir für die apparative Unterstützung.

Aus dem Institut für technische Physik der Technischen Hochschule Darmstadt

Matrizelemente für die Elektronenkonfiguration f^4

I. Die Koeffizienten der Abstammungsanteile und die Matrizelemente der Spin-Bahn-Kopplung

Von

S. HÜFNER

(Eingegangen am 26. April 1961)

An Hand der von RACAH entwickelten Methode der Tensoroperatoren werden die Koeffizienten der Abstammungsanteile ("coefficients of fractional parentage") und die Matrizelemente der Spin-Bahn-Kopplung für die Elektronenkonfiguration f^4 berechnet und tabellarisch zusammengestellt.

I. Einleitung

Bei Untersuchungen der Spektren kristalliner Salze der Seltenen Erden (SE) ist es möglich, aus Anzahl und Polarisation der Absorptions- und Emissionslinien die Zustände im Kristall und ihre Kristallquantenzahlen sowie die J -Werte der Terme zu bestimmen; aus dem Zeeman-Effekt lassen sich die Aufspaltungsfaktoren der Kristallfeldkomponenten und die Landéschen g -Faktoren der Terme gewinnen. Für Aussagen über die Zustände des freien, vom Kristallfeld nicht gestörten Ions reichen die eben genannten Informationen jedoch nur in wenigen Fällen aus. Man ist daher dazu übergegangen, die Termlagen für die Elektronenkonfigurationen f^n näherungsweise zu berechnen und mit den spektroskopischen Daten zu vergleichen. Alle diese Rechnungen benutzen insbesondere das Buch von CONDON und SHORTLEY¹ sowie die Arbeiten von RACAH².

ELLIOTT, JUDD und RUNCIMAN³ haben mit den in diesen Arbeiten entwickelten Methoden die Lagen der meisten Terme für die Elektronenkonfigurationen f^n in der Russel-Saunders-Näherung berechnet. Es zeigt sich jedoch, daß diese Näherung in den meisten Fällen nicht ausreicht; besonders in der zweiten Hälfte der Reihe der SE, bei der die Werte der Spin-Bahn-Kopplungskonstanten ζ verhältnismäßig groß sind und somit der Fall der „mittleren Kopplung“ realisiert ist.

¹ CONDON, E. U., and G. H. SHORTLEY: The Theory of Atomic Spectra. Cambridge: Cambridge University Press 1957.

² RACAH, G.: Phys. Rev. **61**, 186 (1941); **62**, 438 (1942); **63**, 367 (1943); **76**, 1352 (1949); im folgenden mit I, II, III bzw. IV bezeichnet.

³ ELLIOTT, J. P., B. R. JUDD and W. A. RUNCIMAN: Proc. Roy. Soc. Lond. A **240**, 509 (1957); im folgenden mit EJR bezeichnet.

Erst wenn man die Termnagen für mittlere Kopplung berechnet, erhält man eine gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment, wie die Arbeiten von JUDD und LOUDON⁴, WYBOURNE⁵, GRUBER und CONWAY⁶ und KAHLE⁷ zeigen.

Zur theoretischen Berechnung der Terme der Elektronenkonfigurationen f^4 benötigt man die Matricelemente der Coulomb-Abstoßung der f -Elektronen und die Matricelemente ihrer Spin-Bahn-Kopplung, die sich beide mit den von RACAH in II, III und IV angegebenen Hilfsmitteln berechnen lassen. Die Berechnung der Matricelemente der Spin-Bahn-Kopplung ist dabei etwas langwierig. Sie wurde bisher für die Elektronenkonfiguration f^2 von SPEDDING⁸ und für f^3 von JUDD und LOUDON⁴ ausgeführt.

Inzwischen haben wir die Koeffizienten der Abstammungsanteile (K. d. A.) (Tabelle 1) und die Matricelemente der Spin-Bahn-Kopplung (Tabelle 2) für die Elektronenkonfiguration f^4 berechnet; damit sollen die Hilfsmittel für eine weitere Analyse des Spektrum des Ho^{3+} -Ions bereitgestellt werden.

II. Die Koeffizienten der Abstammungsanteile

In einem System von n äquivalenten Elektronen mit der Bahndrehimpulsquantenzahl l läßt sich jeder Zustand ψ als Linearkombination von Produkten der Zustände der $n-1$ ersten Elektronen mit dem Zustand des n -ten Elektrons darstellen, und zwar in der folgenden Weise (siehe III oder EJR):

$$\psi(l^n \alpha S L M_S M_L) = \sum_{\bar{\alpha} \bar{S} \bar{L}} (l^n \alpha S L) \left[l^{n-1} (\bar{\alpha} \bar{S} \bar{L}) \right. \\ \left. \times \sum_{\bar{M}_S \bar{M}_L m_l m_s} (\bar{S} \frac{1}{2} S M_S | \bar{S} \frac{1}{2} \bar{M}_S m_s) (\bar{L} l L M_L | \bar{L} l \bar{M}_L m_l) \right. \\ \left. \times \bar{\psi}(l^{n-1} \bar{\alpha} \bar{S} \bar{L} \bar{M}_S \bar{M}_L) \varphi(l m_s m_l) \right] \quad (1)$$

Dabei sind $\alpha S L M_S M_L$ die Quantenzahlen, die den zu berechnenden Zustand kennzeichnen; die entsprechenden überstrichenen Größen beziehen sich auf die Elternzustände, über die summiert wird. Die Faktoren in der ersten Summe sind die K.d.A., während die zweite Summe lediglich die Kopplung der Drehimpulse des n -ten Elektrons mit denen der $n-1$ ersten Elektronen beschreibt. Bei der Summation ist darauf zu achten, daß die Eigenfunktionen $\psi(l^n \alpha S L M_S M_L)$ der durch das Pauli-Prinzip geforderten Antisymmetrie genügen. — Ein einfaches

⁴ JUDD, B.R., and R. LOUDON: Proc. Roy. Soc. Lond. A **251**, 127 (1959).

⁵ WYBOURNE, B.G.: J. Chem. Phys. **32**, 639 (1960).

⁶ GRUBER, J.B., and J.G. CONWAY: J. Chem. Phys. **32**, 1178 (1960).

⁷ KAHLE, H.G.: Z. Physik **161**, 486 (1961).

⁸ SPEDDING, F.H.: Phys. Rev. **58**, 255 (1940).

Beispiel für die Berechnung der K.d.A. findet sich bei RACAH III und EJR.

In IV gibt RACAH ein Verfahren an, nach dem man die K.d.A. für die Elektronenkonfigurationen f^n ermitteln kann. Er untersucht dabei zunächst das Transformationsverhalten der Zustände unter der Anwendung der Gruppen R_7 und G_2 .

Die irreduzible Darstellung von R_7 wird durch das Zahlentripel $(w_1 w_2 w_3) \equiv W$, die von G_2 durch das Zahlenpaar $(u_1, u_2) \equiv U$ gekennzeichnet. Indem RACAH W und U als neue zusätzliche Quantenzahlen einführt, kann er auch die Zustände der Elektronenkonfiguration, die gleiches LSJ haben, unterscheiden. Jeder Zustand ist dann durch die Quantenzahlen $f^n \alpha U W S L$ eindeutig gekennzeichnet. Äquivalent mit diesem Satz von Quantenzahlen ist der folgende: $f^n \alpha U v S L$, der in früheren Arbeiten von RACAH verwendet wurde. Dabei ist v die sog. seniority number (s. III). Aus dem Transformationsverhalten der Zustände leitet RACAH in IV die folgende Produktdarstellung der K.d.A. für die Elektronenkonfiguration f^n ab.

$$\left(f^n(\alpha U v S L) \left[f^{n-1}(\bar{\alpha} \bar{U} \bar{v} \bar{S} \bar{L}) \right] = (W U | \bar{W} \bar{U} + f) \times \right. \\ \left. \times (U \alpha L | \bar{U} \bar{\alpha} \bar{L} + f) (f^n v S \left[f^{n-1} \bar{v} \bar{S} + f \right] \right) \right\} \quad (2)$$

Der erste und der zweite Faktor der rechten Seite der Gleichung können den Tabellen 3 und 4 von IV entnommen werden, während sich der dritte mit Hilfe der Gln. (52) und (56) von IV bestimmen läßt.

In Tabelle 1 sind alle K.d.A. für die Elektronenkonfiguration f^4 angegeben; die Elternzustände werden von links nach rechts aufgeführt, die Zustände von f^4 von oben nach unten. Die Dezimalschreibweise wird zur Vermeidung der zum Teil sehr unhandlichen Brüche gewählt. Eine gute Kontrollmöglichkeit innerhalb der Tabelle bildet die Tatsache, daß die Summe der Absolutquadrate der K.d.A. in jeder Zeile den Wert 1 ergeben muß.

III. Die Matricelemente

Mit Hilfe der von RACAH² entwickelten Methode der Tensoroperatoren und der K.d.A. ergibt sich für die Elektronenkonfiguration f^n folgender Ausdruck für die Matricelemente der Spin-Bahn-Kopplung (s. II, III und EJR)

$$\left\langle \psi_{JM} \left| \zeta \sum_{i=1}^n (\vec{s}_i \vec{l}_i) \right| \psi'_{JM} \right\rangle = -n \zeta \left\{ \frac{3}{2} l(l+1)(2l+1) \times \right. \\ \left. \times (2L+1)(2L'+1)(2S+1)(2S'+1)^{\frac{1}{2}} W(J L S' 1; S L') \right\} \\ \times \sum_{\bar{v}} (\psi \left[\bar{\psi} \right]) (\psi' \left[\bar{\psi} \right]) W(\bar{S} \bar{S} \frac{1}{2} 1; \frac{1}{2} S') W(\bar{L} \bar{L} l 1; l L'). \quad (3)$$

Tabelle 1. Die Koeffizienten der Abstammungsanteile für Elternzustände, in der Randspalte

$\bar{\psi}$ ψ'	$(111)(00)^1S$	$(111)(10)^1F$	$(111)(20)^1D$	$(111)(20)^1G$	$(111)(20)^1I$	$(210)(11)^2P$	$(210)(11)^2H$	$(210)(20)^2D$
$(111)(00)^5S$	—	—1,0000	—	—	—	—	—	—
$(111)(10)^5F$	+0,3780	+0,6124	+0,2988	+0,4005	+0,4818	—	—	—
$(111)(20)^5D$	—	—0,3536	—0,5345	+0,7677	—	—	—	—
$(111)(20)^5G$	—	—0,3536	+0,5722	—0,4504	—0,5871	—	—	—
$(111)(20)^5I$	—	—0,3536	—	+0,4885	+0,7977	—	—	—
$(211)(10)^3F$	—0,5071	+0,2739	+0,0148	+0,0199	+0,0239	—0,2928	—0,5606	—0,222
$(211)(11)^3P$	—	—0,5477	+0,1260	—0,1321	—	—	—	+0,538
$(211)(11)^3H$	—	—0,5477	+0,0594	+0,0969	—0,1429	—	—	+0,254
$(211)(20)^3D$	—	—0,5401	+0,1167	—0,1675	—	—0,3499	—0,3159	—0,249
$(211)(20)^3G$	—	—0,5401	—0,1249	+0,0983	—0,1281	+0,2736	—0,3839	+0,267
$(211)(20)^3I$	—	—0,5401	—	—0,1066	—0,1741	—	+0,4714	—
$(211)(21)^3D$	—	—	—0,4738	—0,3299	—	—0,2369	+0,2625	—0,316
$(211)(21)^3F$	—	—	+0,3814	+0,1861	—0,3914	—0,3134	+0,1637	+0,254
$(211)(21)^3G$	—	—	—0,0701	—0,4856	—0,3043	+0,2879	+0,2052	—0,046
$(211)(21)^3H$	—	—	—0,4006	+0,4020	+0,1059	—	+0,3536	—0,267
$(211)(21)^3K$	—	—	—	—0,4020	+0,4144	—	—0,3536	—
$(211)(21)^3L$	—	—	—	—	—0,5773	—	+0,3536	—
$(211)(30)^3P$	—	—	—0,4179	—0,3984	—	—	—	+0,223
$(211)(30)^3F$	—	—	—0,3551	+0,4331	—0,1401	—	—	+0,189
$(211)(30)^3G$	—	—	—0,4513	—0,1421	+0,3308	—	—	+0,241
$(211)(30)^3H$	—	—	—0,3709	—0,2791	—0,3432	—	—	+0,198
$(211)(30)^3I$	—	—	—	—0,4923	—0,3015	—	—	—
$(211)(30)^3K$	—	—	—	—0,4144	—0,4020	—	—	—
$(211)(30)^3I$	—	—	—	—	—0,5773	—	—	—
$(110)(10)^3F$	+0,1690	+0,3651	—0,1782	—0,2390	—0,2873	—0,1464	—0,2803	—0,166
$(110)(11)^3P$	—	—0,1826	—0,3780	+0,3964	—	—	—	—0,101
$(110)(11)^3H$	—	—0,1826	—0,1782	—0,2906	+0,4287	—	—	—0,047
$(220)(20)^1D$	—	—	—	—	—	—0,5421	—0,4894	+0,386
$(220)(20)^1G$	—	—	—	—	—	+0,4238	—0,5947	—0,413
$(220)(20)^1I$	—	—	—	—	—	—	+0,7303	—
$(220)(21)^1D$	—	—	—	—	—	+0,2369	—0,2625	+0,569
$(220)(21)^1F$	—	—	—	—	—	+0,3134	—0,1637	—0,458
$(220)(21)^1G$	—	—	—	—	—	—0,2879	—0,2052	+0,084
$(220)(21)^1H$	—	—	—	—	—	—	—0,3536	+0,481
$(220)(21)^1K$	—	—	—	—	—	—	—0,3536	—
$(220)(21)^1L$	—	—	—	—	—	—	—0,3536	—
$(220)(22)^1S$	—	—	—	—	—	—	—	—
$(220)(22)^1D$	—	—	—	—	—	—	—	—
$(220)(22)^1G$	—	—	—	—	—	—	—	—
$(220)(22)^1H$	—	—	—	—	—	—	—	—
$(220)(22)^1I$	—	—	—	—	—	—	—	—
$(220)(22)^1L$	—	—	—	—	—	—	—	—
$(220)(22)^1N$	—	—	—	—	—	—	—	—
$(200)(20)^1D$	—	—	—	—	—	+0,2070	+0,1869	+0,221
$(200)(20)^1G$	—	—	—	—	—	—0,1618	+0,2271	—0,236
$(200)(20)^1I$	—	—	—	—	—	—	—0,2789	—
$(000)(00)^1S$	—	—	—	—	—	—	—	—

die Elektronenkonfiguration f^4 (in der Kopfspalte stehen die die Zustände der Konfiguration f^4).

$(210)(20)^2G$	$(210)(20)^2I$	$(210)(21)^2D$	$(210)(21)^2F$	$(210)(21)^2G$	$(210)(21)^2H$	$(210)(21)^2K$	$(210)(21)^2L$	$(100)(10)^2F$
—	—	—	—	—	—	—	—	—
—	—	—	—	—	—	—	—	—
—	—	—	—	—	—	—	—	—
—0,2981	—0,3583	—	—	—	—	—	—	—
—0,5650	—	—0,0967	+0,1514	+0,1577	—	—	—	—
+0,4141	—0,6112	+0,0559	—0,0413	+0,0587	—0,1118	—0,1306	+0,1390	—
+0,3582	—	—0,2686	—0,2559	—0,0533	+0,3369	—	—	—
—0,2102	+0,2739	—0,1394	—0,0930	—0,2753	—0,2520	+0,2942	—	—
+0,2279	+0,3722	—	+0,1629	—0,1435	—0,0553	—0,2524	—0,3743	—
—0,2204	—	+0,1653	+0,3780	—0,2888	+0,3732	—	—	—
+0,1243	—0,2615	—0,3194	+0,3536	—0,4072	—	—	—	—
—0,3245	—0,2033	—0,2152	+0,3592	+0,3760	—0,1795	+0,2097	—	—
+0,2686	+0,0708	—0,2516	—	+0,1624	—0,2818	+0,4258	+0,2061	—
—0,2686	+0,2769	—	—	—0,1624	+0,3647	—0,1081	+0,4710	—
—	—0,3858	—	—	—	—0,1657	—0,4424	+0,4118	—
+0,2130	—	+0,4957	—0,2282	+0,5231	—	—	—	—
—0,2315	+0,0749	—0,4461	—	+0,3499	+0,5000	—	—	—
+0,0760	—0,1768	+0,3150	+0,4205	—0,2488	+0,3416	+0,3419	—	—
+0,1492	+0,1835	—0,1941	—0,4298	+0,0595	+0,4834	+0,0209	+0,3339	—
+0,2632	—0,1612	—	+0,2821	+0,4144	+0,2871	+0,3643	—0,3242	—
+0,2215	+0,2149	—	—	—0,3348	—0,2734	+0,5765	+0,2285	—
—	+0,3086	—	—	—	—	—0,3659	—0,6614	—
+0,2236	+0,2687	—	—	—	—	—	—	+0,6455
+0,1059	—	—0,1934	+0,3028	+0,3154	—	—	—	+0,6455
—0,0776	+0,1146	+0,1119	—0,0826	+0,1174	—0,2236	—0,2611	+0,2780	+0,6455
—0,5549	—	+0,0520	+0,0495	+0,0103	—0,0652	—	—	—
+0,3256	—0,4244	+0,0270	+0,0180	+0,0533	+0,0488	—0,0570	—	—
—0,3531	—0,5766	—	—0,0315	+0,0278	+0,0107	+0,0489	+0,0725	—
+0,3967	—	+0,1653	+0,3780	—0,2888	+0,3732	—	—	—
—0,2238	+0,4707	—0,3194	+0,3536	—0,4072	—	—	—	—
+0,5840	+0,3659	—0,2152	+0,3592	+0,3760	—0,1795	+0,2097	—	—
—0,4835	—0,1274	—0,2516	—	+0,1624	—0,2818	+0,4258	+0,2061	—
+0,4835	—0,4984	—	—	—0,1624	+0,3647	—0,1081	+0,4710	—
—	+0,6943	—	—	—	—0,1657	—0,4424	+0,4118	—
—	—	—	+1,0000	—	—	—	—	—
—	—	—0,4507	+0,5520	+0,6813	+0,1677	—	—	—
—	—	+0,6009	+0,2865	—0,0913	—0,6803	—0,2927	—	—
—	—	+0,3989	—0,6306	+0,4183	—0,1464	+0,1994	—0,4550	—
—	—	—	+0,2457	+0,7075	—0,3501	—0,5122	+0,2326	—
—	—	—	—	—	+0,6462	—0,6355	—0,4226	—
—	—	—	—	—	—	—0,5590	+0,8292	—
—0,3178	—	—0,3178	—0,3028	—0,0631	+0,3986	—	—	+0,6455
+0,1865	—0,2431	—0,1650	—0,1101	—0,3257	—0,2981	+0,3481	—	+0,6455
—0,2023	—0,3303	—	+0,1927	—0,1699	—0,0654	—0,2986	—0,4429	+0,6455
—	—	—	—	—	—	—	—	+1,0000

Tabelle 2. Die Matrixelemente der Spin-Bahn-Kopplung

 $J = 0$

$\psi' \backslash \psi$	$(111)(20)^5D$	$(211)(11)^3P$	$(211)(30)^3P$	$(110)(11)^3P$	$(220)(22)^1S$	$(000)(00)^1S$
$(111)(20)^5D$	-1,500	-0,289	+0,957	-3,464	—	—
$(211)(11)^3P$	-0,289	-0,067	-1,106	+0,200	-1,049	—
$(211)(30)^3P$	+0,957	-1,106	-0,333	+3,316	+1,581	—
$(110)(11)^3P$	-3,464	+0,200	+3,316	-0,600	-2,098	-4,471
$(220)(22)^1S$	—	-1,049	+1,581	-2,098	—	—
$(000)(00)^1S$	—	—	—	-4,471	—	—

 $J = 2$

$\psi' \backslash \psi$	$(111)(00)^5S$	$(111)(10)^5F$	$(111)(20)^5D$	$(111)(20)^5G$	$(211)(10)^3F$	$(211)(11)^3P$	$(211)(20)^3D$	$(211)(21)^3D$
$(111)(00)^5S$	—	—	—	—	—	+2,684	—	—
$(111)(10)^5F$	—	-1,500	—	—	-0,548	—	+1,851	+1,253
$(111)(20)^5D$	—	—	-0,750	—	-0,113	-0,171	+0,250	+1,354
$(111)(20)^5G$	—	—	—	-2,500	+0,458	—	—	—
$(211)(10)^3F$	—	-0,548	-0,113	+0,458	+1,533	—	-0,902	-0,0762
$(211)(11)^3P$	+2,684	—	-0,171	—	—	+0,0333	+2,561	—
$(211)(20)^3D$	—	+1,851	+0,250	—	-0,902	+2,561	-0,0357	-0,193
$(211)(21)^3D$	—	+1,253	+1,354	—	-0,0762	—	-0,193	+0,119
$(211)(21)^3F$	—	+1,172	—	+0,935	+0,143	—	—	-1,247
$(211)(30)^3P$	—	—	+0,566	—	—	+0,553	+0,242	+2,151
$(211)(30)^3F$	—	—	+0,674	+2,487	—	—	-0,674	-0,166
$(110)(10)^3F$	—	+1,096	-0,338	+1,374	-0,401	—	-1,014	+0,916
$(110)(11)^3P$	+0,895	—	-2,049	—	—	-0,100	—	—
$(220)(20)^1D$	—	—	—	—	-2,280	+1,998	+0,181	+0,979
$(220)(21)^1D$	—	—	—	—	+0,560	—	-2,842	-1,107
$(220)(22)^1D$	—	—	—	—	—	+0,945	—	—
$(200)(20)^1D$	—	—	—	—	+0,327	+0,990	-0,414	-2,242

 $J = 3$

$\psi' \backslash \psi$	$(111)(10)^5F$	$(111)(20)^5D$	$(111)(20)^5G$	$(211)(10)^3F$	$(211)(20)^3D$	$(211)(20)^3G$
$(111)(10)^5F$	-0,750	—	—	-0,751	+1,212	-0,530
$(111)(20)^5D$	—	—	—	-0,252	+0,267	—
$(111)(20)^5G$	—	—	-1,750	+0,362	—	+0,366
$(211)(10)^3F$	-0,751	-0,252	+0,362	+0,383	-1,078	-0,848
$(211)(20)^3D$	+1,212	+0,267	—	-1,078	+0,0714	—
$(211)(20)^3G$	-0,530	—	+0,366	-0,848	—	-0,179
$(211)(21)^3D$	+0,820	+1,447	—	-0,0910	+0,387	—
$(211)(21)^3F$	+1,605	—	+0,739	+0,0357	—	+0,216
$(211)(21)^3G$	-0,557	—	+0,565	-0,111	—	-0,276
$(211)(30)^3F$	—	+1,507	+1,966	—	-0,806	+0,576
$(211)(30)^3G$	—	—	-1,323	—	—	+0,646
$(110)(10)^3F$	+1,500	-0,756	+1,086	-0,100	-1,213	-0,953
$(220)(21)^1F$	—	—	—	+0,741	—	-1,499

für die Elektronenkonfiguration f^4
 $J = 1$

$\psi \backslash \psi'$	$(111)(10)^5F$	$(111)(20)^5D$	$(211)(11)^3P$	$(211)(20)^3D$	$(211)(21)^3D$	$(211)(30)^3P$	$(110)(11)^3P$
$(111)(10)^5F$	-2,000	—	—	+2,267	+1,535	—	—
$(111)(20)^5D$	—	-1,250	-0,250	+0,164	+0,886	+0,829	-3,000
$(211)(11)^3P$	—	-0,250	-0,033	+1,909	—	-0,553	+0,100
$(211)(20)^3D$	+2,267	+0,164	+1,909	-0,107	-0,580	+0,181	—
$(211)(21)^3D$	+1,535	+0,886	—	-0,580	+0,357	+1,604	—
$(211)(30)^3P$	—	+0,829	-0,553	+0,181	+1,604	-0,167	+1,658
$(110)(11)^3P$	—	-3,000	+0,100	—	—	+1,658	-0,300

 $J = 2$

	$(211)(21)^3F$	$(211)(30)^3P$	$(211)(30)^3F$	$(110)(10)^3F$	$(110)(11)^3P$	$(220)(20)^1D$	$(220)(21)^1D$	$(220)(22)^1D$	$(200)(20)^1D$
—	—	—	—	—	+0,895	—	—	—	—
+1,172	—	—	—	+1,096	—	—	—	—	—
—	+0,566	+0,674	—	-0,338	-2,049	—	—	—	—
+0,935	—	+2,487	+1,374	—	—	—	—	—	—
+0,143	—	—	-0,401	—	—	-2,280	+0,560	—	+0,327
—	+0,553	—	—	—	-0,100	+1,998	—	+0,945	+0,990
—	+0,242	-0,674	-1,014	—	—	+0,181	-2,842	—	-0,414
-1,247	+2,151	-0,166	+0,916	—	—	+0,979	-1,107	—	-2,242
-2,000	—	-1,551	-1,713	—	—	—	-1,528	—	—
—	+0,167	—	—	—	-1,658	-0,179	—	+0,285	-0,469
-1,551	—	-0,667	—	—	—	-0,746	—	-2,465	-1,952
-1,713	—	—	-1,200	—	—	-0,428	-1,121	—	-1,469
—	-1,658	—	—	—	+0,300	-0,324	—	+1,890	+1,272
—	-0,179	-0,746	-0,428	0,324	—	—	—	—	—
-1,528	—	—	-1,121	—	—	—	—	—	—
—	+0,285	-2,465	—	—	+1,890	—	—	—	—
—	-0,469	-1,952	-1,469	+1,272	—	—	—	—	—

 $J = 3$

	$(211)(21)^3D$	$(211)(21)^3F$	$(211)(21)^3G$	$(211)(30)^3F$	$(211)(30)^3G$	$(110)(10)^3F$	$(220)(21)^1F$
+0,820	—	+1,605	-0,557	—	—	+1,500	—
+1,447	—	—	—	+1,507	—	-0,756	—
—	—	+0,739	+0,565	+1,966	-1,323	+1,086	—
-0,0910	+0,0357	—	-0,111	—	—	-0,100	+0,741
+0,387	—	—	—	-0,806	—	-1,213	—
—	—	+0,216	-0,276	+0,576	+0,646	-0,953	-1,499
-0,238	-1,491	—	—	-0,198	—	+1,094	+1,291
-1,491	-0,500	—	—	-0,388	-1,676	-0,428	+0,576
—	—	—	-1,738	-1,026	+0,997	+1,338	—
-0,198	-0,388	-1,026	-0,167	—	—	—	—
—	-1,676	+0,997	—	—	-0,833	—	—
+1,094	-0,428	+1,338	—	—	—	-0,300	-1,482
+1,291	+0,576	—	—	—	—	-1,482	—

Tabelle 2

 $J = 4$

$\psi' \backslash \psi$	$(111)(10)^5F$	$(111)(20)^5D$	$(111)(20)^5G$	$(111)(20)^5I$	$(211)(10)^3F$	$(211)(11)^3H$	$(211)(20)^3G$	$(211)(21)^3F$	$(211)(21)^3G$
$(111)(10)^5F$	+0,250	—	—	—	-0,751	—	-1,086	+1,605	-1,142
$(111)(20)^5D$	—	+1,000	—	—	-0,437	—	—	—	—
$(111)(20)^5G$	—	—	-0,750	—	+0,231	+0,056	+0,479	+0,472	+0,740
$(111)(20)^5I$	—	—	—	-3,500	—	-0,141	—	—	—
$(211)(10)^3F$	-0,751	-0,437	+0,231	—	-1,150	—	-0,965	-0,107	-0,127
$(211)(11)^3H$	—	—	+0,056	-0,141	—	-0,200	+1,611	—	—
$(211)(20)^3G$	-1,086	—	0,479	—	-0,965	+1,611	-0,036	+0,246	-0,0551
$(211)(21)^3F$	+1,605	—	+0,472	—	-0,107	—	+0,246	+1,500	—
$(211)(21)^3G$	-1,142	—	+0,740	—	-0,127	—	-0,0551	—	-0,348
$(211)(21)^3H$	—	—	-0,378	-1,456	—	—	+0,310	—	-1,326
$(211)(30)^3F$	—	+2,610	+1,257	—	—	—	+0,655	+1,163	-1,168
$(211)(30)^3G$	—	—	-1,730	—	—	-0,499	+0,129	-1,908	+0,199
$(211)(30)^3H$	—	—	-0,350	+2,358	—	-0,416	+0,287	—	+1,637
$(110)(10)^3F$	+1,500	-1,309	+0,693	—	+0,301	—	-1,086	+1,284	+1,523
$(110)(11)^3H$	—	—	+0,673	-1,683	—	+0,600	—	—	—
$(220)(20)^1G$	—	—	—	—	+1,784	-1,719	+0,330	-0,456	+0,509
$(220)(21)^1G$	—	—	—	—	-0,681	—	-1,480	—	+0,0639
$(220)(22)^1G$	—	—	—	—	—	-0,570	—	—	—
$(200)(20)^1G$	—	—	—	—	-0,256	-0,852	-0,756	+1,043	-1,168

 $J = 5$

$\psi' \backslash \psi$	$(111)(10)^5F$	$(111)(20)^5G$	$(111)(20)^5I$	$(211)(11)^3H$	$(211)(20)^3G$	$(211)(20)^3I$
$(111)(10)^5F$	+1,500	—	—	—	-1,774	—
$(111)(20)^5G$	—	+0,500	—	+0,110	+0,463	—
$(111)(20)^5I$	—	—	-2,250	-0,108	—	+0,560
$(211)(11)^3H$	—	+0,110	-0,108	-0,0333	+1,784	+1,199
$(211)(20)^3G$	-1,774	+0,463	—	+1,784	+0,143	—
$(211)(20)^3I$	—	—	+0,560	+1,199	—	-0,250
$(211)(21)^3G$	-1,865	+0,715	—	—	+0,221	—
$(211)(21)^3H$	—	-0,742	-1,112	—	+0,344	-0,355
$(211)(30)^3G$	—	-1,674	—	-0,552	-0,517	—
$(211)(30)^3H$	—	-0,688	+1,802	-0,0695	+0,318	+0,576
$(211)(30)^3I$	—	—	-0,646	-0,554	—	+0,289
$(110)(11)^3H$	—	+1,322	-1,286	+0,100	—	—
$(220)(21)^1H$	—	—	—	—	+1,883	+2,336
$(220)(22)^1H$	—	—	—	+0,837	—	—

(Fortsetzung)

 $J = 4$

$(211)(21)^3H$	$(211)(30)^3F$	$(211)(30)^3G$	$(211)(30)^3H$	$(110)(10)^3F$	$(110)(11)^3H$	$(220)(20)^1G$	$(220)(21)^1G$	$(220)(22)^1G$	$(200)(20)^1G$
—	—	—	—	+1,500	—	—	—	—	—
—	+2,610	—	—	—1,309	—	—	—	—	—
-0,378	+1,257	-1,730	-0,350	+0,693	+0,673	—	—	—	—
-1,456	—	—	+2,358	—	-1,683	—	—	—	—
—	—	—	—	+0,301	—	+1,784	-0,681	—	-0,256
—	—	-0,499	-0,416	—	+0,600	-1,719	—	-0,570	-0,852
+0,310	+0,655	+0,129	+0,287	-1,086	—	+0,330	-1,480	—	-0,756
—	+1,163	-1,908	—	+1,284	—	-0,456	—	—	+1,043
-1,326	-1,168	+0,199	+1,637	+1,523	—	+0,509	+0,063 9	—	-1,168
-0,200	—	+0,480	+0,863	—	—	+0,717	-1,483	—	-1,643
—	+0,500	—	—	—	—	-0,530	—	-2,500	-1,388
+0,480	—	-0,167	—	—	+1,496	-0,522	—	+2,134	-1,366
+0,863	—	—	-1,000	—	+1,249	+0,290	+0,001 14	+2,465	+0,760
—	—	—	—	+0,900	—	+0,335	+1,363	—	+1,150
—	—	+1,496	+1,249	—	-1,800	+0,279	—	-1,140	-1,097
+0,717	-0,530	-0,522	+0,290	+0,335	+0,279	—	—	—	—
-1,483	—	—	+0,001 14	+1,363	—	—	—	—	—
—	-2,500	+2,134	+2,465	—	-1,140	—	—	—	—
-1,643	-1,388	-1,366	+0,760	+1,150	-1,097	—	—	—	—

 $J = 5$

$(211)(21)^3G$	$(211)(21)^3H$	$(211)(30)^3G$	$(211)(30)^3H$	$(211)(30)^3I$	$(110)(11)^3H$	$(220)(21)^1H$	$(220)(22)^1H$
-1,865	—	—	—	—	—	—	—
+0,715	-0,742	-1,674	-0,688	—	+1,322	—	—
—	-1,112	—	+1,802	-0,646	-1,286	—	—
—	—	-0,552	-0,0695	-0,554	+0,100	—	+0,837
+0,221	+0,344	-0,517	+0,318	—	—	+1,883	—
—	-0,355	—	+0,576	+0,289	—	+2,336	—
+1,390	-1,469	-0,797	+1,813	—	—	+1,342	—
-1,469	-0,0333	+0,532	+0,144	-0,821	—	-1,643	—
-0,797	+0,532	+0,667	—	—	+1,657	—	-0,992
+1,813	+0,144	—	-0,167	—	+0,209	—	+1,743
—	-0,821	—	—	-1,167	+1,660	—	-0,992
—	—	+1,657	+0,209	+1,660	-0,300	—	+1,673
+1,342	-1,643	—	—	—	—	—	—
—	—	-0,992	+1,743	-0,992	+1,673	—	—

Tabelle 2

 $J = 6$

$\psi \backslash \psi'$	$(111)(20)^5G$	$(111)(20)^5I$	$(211)(11)^3H$	$(211)(20)^3I$	$(211)(21)^3H$	$(211)(21)^3K$
$(111)(20)^5G$	+2,000	—	+0,174	—	-1,173	—
$(111)(20)^5I$	—	-0,750	-0,0668	+0,702	-0,690	+0,402
$(211)(11)^3H$	+0,174	-0,0668	+0,167	+1,304	—	—
$(211)(20)^3I$	—	+0,702	+1,304	-0,0357	-0,387	-0,307
$(211)(21)^3H$	-1,173	-0,690	—	-0,387	+0,167	—
$(211)(21)^3K$	—	+0,402	—	-0,307	—	-1,381
$(211)(30)^3H$	-1,087	+1,117	+0,347	+0,626	-0,720	—
$(211)(30)^3I$	—	-0,810	-0,602	+0,0413	-0,893	+1,594
$(211)(30)^3K$	—	-0,828	—	+0,633	—	+0,787
$(110)(11)^3H$	+2,090	-0,797	-0,500	—	—	—
$(220)(20)^1I$	—	—	+1,153	+0,477	+0,740	-0,684
$(220)(22)^1I$	—	—	+0,729	—	—	—
$(200)(20)^1I$	—	—	+0,571	-1,095	-1,694	+1,568

 $J = 7$

$\psi \backslash \psi'$	$(111)(20)^5I$	$(211)(20)^3I$	$(211)(21)^3K$	$(211)(21)^3L$	$(211)(30)^3I$	$(211)(30)^3K$	$(220)(21)^1K$
$(111)(20)^5I$	+1,000	+0,656	+0,756	—	-0,757	-1,558	—
$(211)(20)^3I$	+0,656	+0,214	-0,330	—	-0,248	+0,680	-1,852
$(211)(21)^3K$	+0,756	-0,330	+0,173	-1,365	+1,714	+0,0985	-1,202
$(211)(21)^3L$	—	—	-1,365	-1,875	—	+1,325	-1,459
$(211)(30)^3I$	-0,757	-0,248	+1,714	—	+1,000	—	—
$(211)(30)^3K$	-1,558	+0,680	+0,0985	+1,325	—	-0,167	+0,001
$(220)(21)^1K$	—	-1,852	-1,202	-1,459	—	+0,001	—

 $J = 9$

$\psi \backslash \psi'$	$(211)(21)^3L$	$(211)(30)^3M$
$(211)(21)^3L$	+1,667	+1,489
$(211)(30)^3M$	+1,489	-0,167

Dabei ist $\xi \sum_{i=1}^n (\vec{s}_i \cdot \vec{l}_i)$ der Operator der Spin-Bahn-Kopplung, ψ_{JM} und ψ'_{JM} sind zwei Zustände, die durch die Quantenzahlen $WUSL$ bzw. $W'U'S'L'$ gekennzeichnet sind. $(\psi \llbracket \bar{\psi})$ bzw. $(\psi' \llbracket \bar{\psi})$ sind die K.d.A.; die überstrichenen Größen beziehen sich dabei auf die Elternzustände; $W(abcd; ef)$ sind Racah-Funktionen (II), die sich, soweit sie nicht

(Fortsetzung)

 $J = 6$

$\begin{matrix} \psi' \\ \psi \end{matrix}$	$(211)(30)^3H$	$(211)(30)^3I$	$(211)(30)^3K$	$(110)(41)^3H$	$(220)(20)^1I$	$(220)(22)^1I$	$(200)(20)^1I$
$(111)(20)^5I$	-1,087	—	—	+2,090	—	—	—
$(211)(21)^3K$	+1,117	-0,810	-0,828	-0,797	—	—	—
$(211)(21)^3L$	+0,347	-0,602	—	-0,500	+1,153	+0,729	+0,571
$(211)(30)^3K$	+0,626	+0,0413	+0,633	—	+0,477	—	-1,095
$(211)(30)^3M$	-0,720	-0,893	—	—	+0,740	—	-1,694
$(220)(21)^1L$	—	+1,594	+0,787	—	-0,684	—	+1,568
$(220)(22)^1L$	+0,833	—	—	-1,041	-0,524	-0,584	-1,373
	—	-0,167	—	+1,807	-0,242	+1,882	-0,632
	—	—	-1,333	—	+0,617	+1,528	+1,617
	-1,041	+1,807	—	+1,500	-0,187	+1,458	+0,735
	-0,524	-0,242	+0,617	-0,187	—	—	—
	-0,584	+1,882	+1,528	+1,458	—	—	—
	-1,373	-0,632	+1,617	+0,735	—	—	—

 $J = 8$

$\begin{matrix} \psi' \\ \psi \end{matrix}$	$(111)(20)^5I$	$(211)(21)^3K$	$(211)(21)^3L$	$(211)(30)^3K$	$(211)(30)^3M$	$(220)(21)^1L$	$(220)(22)^1L$
$(111)(20)^5I$	+3,000	+1,156	—	-2,381	—	—	—
$(211)(21)^3K$	+1,156	+1,208	-1,454	-0,689	—	+1,370	—
$(211)(21)^3L$	—	-1,454	-0,208	+1,411	+1,409	-1,061	—
$(211)(30)^3K$	-2,381	-0,689	+1,411	+1,167	—	—	-2,590
$(211)(30)^3M$	—	—	+1,409	—	-1,667	—	-2,300
$(220)(21)^1L$	—	+1,370	-1,061	—	—	—	—
$(220)(22)^1L$	—	—	—	-2,590	-2,300	—	—

 $J = 10$

$\begin{matrix} \psi' \\ \psi \end{matrix}$	$(211)(30)^3M$	$(220)(22)^1N$
$(211)(30)^3M$	+1,500	+1,580
$(220)(22)^1N$	+1,580	—

tabelliert sind⁹, nach den von RACAH (II) angegebenen Formeln berechnen lassen.

In Tabelle 2 sind die Matricelemente der Spin-Bahn-Kopplung bei der Elektronenkonfiguration f^4 für alle vorkommenden J -Werte angegeben. Jeder Zustand ist durch die Quantenzahlen $WUSLJ$ gekennzeichnet.

⁹ SIMON, A., J. H. VAN DER SLUIS, L. C. BIEDENHARN (1954): Tables of the Racah coefficients, ORNL 1679.

IV. Auswahlregeln

Verschiedene Auswahlregeln für die Matricelemente der Spin-Bahn-Kopplung der Elektronenkonfiguration f^n hat McLELLAN¹⁰ angegeben.

Weitere Auswahlregeln für diese Matricelemente ergeben sich aus Formel (3). Für die Racah-Funktionen gelten die bekannten Dreiecksrelationen⁹; das bedeutet: die Racah-Funktion $W(JLS'1; SL')$ ist nur dann von null verschieden, wenn die beiden folgenden Dreiecksrelationen erfüllt sind:

$$\left. \begin{array}{l} \triangle(L L' 1) \quad \text{d.h.} \quad L - L' \leq 1 \\ \triangle(S S' 1) \quad \text{d.h.} \quad S - S' \leq 1. \end{array} \right\} \quad (4)$$

Daraus folgen für die Matricelemente der Spin-Bahn-Kopplung die Auswahlregeln:

$$\left. \begin{array}{l} \langle \psi | \xi \sum_{i=1}^n \vec{s}_i \vec{l}_i | \psi' \rangle \neq 0 \quad \text{nur, wenn} \quad \Delta L = 0, \pm 1 \\ \quad \quad \quad \text{und} \quad \Delta S = 0, \pm 1. \end{array} \right\} \quad (5)$$

Dabei steht ψ bzw. ψ' jeweils für den ganzen Satz von Quantenzahlen, die einen Zustand charakterisieren.

Ganz ähnliche Auswahlregeln ergeben sich für die Matricelemente der Tensoroperatoren U^2, U^4, U^6 , die eine wesentliche Rolle bei der Berechnung der Kristallfeldaufspaltung spielen; für diese Matricelemente ergibt sich nach RACAH der Ausdruck (s. auch EJR):

$$\left. \begin{array}{l} \langle f^n \alpha U v S L M_J | U_q^k | f^n \alpha' U' v' S L' M_J' \rangle \\ = (-1)^{J+M_J+S-L-L'+2k+q} (2k-1)^{-\frac{1}{2}} \{ (2J+1)(2J'+1) \}^{-\frac{1}{2}} \times \\ \times (J J' - M_J M_J' | J J' k - q) W(L J L' J'; S k) \times \\ \times \langle f^n \alpha U v S L || U^k || f^n \alpha' U' v' S L' \rangle. \end{array} \right\} \quad (6)$$

Die Racah-Funktion $W(L J L' J'; S k)$ ist nur dann von null verschieden, wenn gilt:

$$\triangle(L L' k) \quad \text{d.h.} \quad L - L' \leq k. \quad (7)$$

Daraus folgt die Auswahlregel:

$$\langle \psi | U_q^k | \psi' \rangle \neq 0 \quad \text{nur, wenn} \quad \Delta L = 0, \pm 1, \dots \pm k. \quad (8)$$

Mein Dank gilt Herrn Professor HELLWEGE und Herrn Dr. KAHLE für wertvolle Diskussionen.

¹⁰ McLELLAN, A. G.: J. Chem. Phys. **33**, 419 (1960).

Aus dem Institut für technische Physik der Technischen Hochschule Darmstadt

Matrizelemente für die Elektronenkonfiguration f^4

II. Termschema des Ho^{3+} -Ions

Von

S. HÜFNER

Mit 1 Figur im Text

(Eingegangen am 26. April 1961)

Die Terme des Ho^{3+} -Ions werden durch Diagonalisieren der vollständigen Matrizen der Coulomb-Abstoßung und der Spin-Bahn-Wechselwirkung für die Elektronenkonfiguration $f^{10} \cong f^4$ berechnet. Es besteht gute Übereinstimmung in den J -Werten und den Termenergien zwischen Experiment und Theorie.

I. Einleitung

In einer vor kurzem veröffentlichten Arbeit¹ wurde das Absorptionsspektrum des Ho^{3+} -Ions in Salzen verschiedener Symmetrie im sichtbaren Spektralgebiet aufgenommen und analysiert. Für das ultrarote Spektralgebiet sind diese Untersuchungen im Gange. Unter Zuhilfenahme des damit vorliegenden experimentellen Materials werden in der vorliegenden Arbeit die Termlagen für das freie Ho^{3+} -Ion durch Diagonalisieren der vollständigen Matrizen der Coulomb-Wechselwirkung und der Spin-Bahn-Wechselwirkung berechnet.

II. Die Energie der Terme des freien Ho^{3+} -Ions

1. Die Störungsrechnung. Bei der theoretischen Berechnung der Terme der dreifach ionisierten Seltenen-Erd-Ionen faßt man alle Wechselwirkungen innerhalb des Atoms (Coulomb-Wechselwirkung der Elektronen mit dem Kern und untereinander, kinetische Energie der Elektronen, magnetische Wechselwirkungen) bis auf die Coulomb-Wechselwirkung und die Spin-Bahn-Kopplung der $4f$ -Elektronen zu dem Hamilton-Operator \mathcal{H}_0 des ungestörten Problems zusammen und führt dann die Operatoren der Coulomb-Wechselwirkung und der Spin-Bahn-Kopplung der $4f$ -Elektronen als Störoperatoren ein, d. h. es gilt

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \sum_{\substack{i=1 \\ i < j}}^n \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} + \zeta \sum_{i=1}^n (\vec{s}_i \vec{l}_i) \quad (1)$$

(n = Anzahl der $4f$ -Elektronen).

¹ GROHMANN, I., K. H. HELLWEGE u. H. G. KAHLE: Z. Physik **164**, 243 (1961).

Dabei bewirkt die Coulomb-Wechselwirkung die Aufspaltung in die einzelnen Multipletts, während durch die Spin-Bahn-Kopplung die Multiplettaufspaltung zustande kommt.

Ist die Spin-Bahn-Kopplung innerhalb eines Multipletts sehr klein gegen die Wechselwirkung zwischen den einzelnen Multipletts, d.h. im Fall von Russel-Saunders- (RS) -Kopplung, so kann man bei der Störungsrechnung die Coulomb-Wechselwirkung und die Spin-Bahn-Kopplung nacheinander als Störungen einführen. Bei den SE liegt, wie die experimentellen Ergebnisse zeigen, die sog. mittlere Kopplung vor, so daß man bei der Berechnung der Zustände die Coulomb-Wechselwirkung und die Spin-Bahn-Kopplung gleichzeitig als Störungen einführen muß. Das führt zu einer Durchmischung aller RS -Terme mit gleichen J und bedeutet mathematisch die Diagonalisierung von Matrizen, deren Ordnung gleich der Anzahl der Terme mit gleichem J ist.

2. Die Coulomb-Wechselwirkung. Für die Matrixelemente des Operators der Coulomb-Wechselwirkung ergibt sich nach RACAH^{2,3,4} der folgende Ausdruck:

$$\left\langle f^4 W U S L M_S M_L \left| \sum_{\substack{i=1 \\ i < j}}^4 \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}} \right| f^4 W' U' S M_S M_L \right\rangle = \sum_{k=0}^3 e_k E^{(k)}. \quad (2)$$

Dabei sind $W U S L M_S M_L$ die einen Zustand kennzeichnenden Quantenzahlen, e_k Erwartungswerte von Tensoroperatoren und $E^{(k)}$ die folgenden Linearkombinationen der Slater-Integrale F_k :

$$\left. \begin{aligned} E^{(0)} &= F_0 - 10 F_2 - 33 F_4 - 286 F_6 \\ E^{(1)} &= \frac{1}{9} \{70 F_2 + 231 F_4 + 2002 F_6\} \\ E^{(2)} &= \frac{1}{9} \{F_2 - 3 F_4 + 7 F_6\} \\ E^{(3)} &= \frac{1}{3} \{5 F_2 + 6 F_4 - 91 F_6\}. \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

Die Matrixelemente der Coulomb-Wechselwirkung werden aus den bei RACAH angegebenen Formeln und Tabellen bestimmt. Als Kontrolle dienten die von REILLY⁵ berechneten Werte, mit denen völlige Übereinstimmung erzielt wurde.

3. Die Spin-Bahn-Kopplung. Die Matrixelemente der Spin-Bahn-Kopplung für die Elektronenkonfiguration f^4 wurden früher angegeben⁶. Sie gelten für das Holmium mit der Elektronenkonfiguration f^4 mit umgekehrtem Vorzeichen.

4. Die Durchführung der Rechnungen. Sämtliche Matrizen wurden mit einem IBM 650 Rechenautomaten diagonalisiert. Für die in die

² RACAH, G.: Phys. Rev. **62**, 438 (1942).

³ RACAH, G.: Phys. Rev. **63**, 367 (1943).

⁴ RACAH, G.: Phys. Rev. **76**, 1352 (1949).

⁵ REILLY, F.: Phys. Rev. **91**, 876 (1953).

⁶ HÜFNER, S.: Z. Physik **164**, 257 (1961).

Rechnungen eingehenden Konstanten F_2 , F_4 und F_6 (Slater-Integrale) wurden zunächst folgende Näherungswerte benutzt⁷:

$$\left. \begin{aligned} F_2 &= 409 \text{ cm}^{-1} \\ F_4 &= 0,1381 F_2 \\ F_6 &= 0,01511 F_2, \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

während ζ/F_2 (ζ Spin-Bahn-Kopplungskonstante) in Schritten von 1,5 von 0 bis 6 variiert wurde. Damit erhält man Kurven für die Termenergie in Abhängigkeit von ζ/F_2 , die ähnlich den in Fig. 1 dargestellten verlaufen.

5. Ergebnisse und Vergleich mit dem Experiment. Nimmt man für ζ den von BLEANEY⁸ angegebenen Näherungswert von $\zeta = 2180 \text{ cm}^{-1}$ und für F_2 den Wert in Gl. (4), dann zeigt sich bei einem Vergleich zwischen den im sichtbaren und ultraroten Spektralgebiet gefundenen Termen und den für $\zeta/F_2 = 5,33$ nach dem obigen Verfahren berechneten Termen, daß die Übereinstimmung bei den Quintett-Termen gut ist, die Triplett-Terme jedoch um etwa 2000 cm^{-1} zu niedrig berechnet werden. Die Konstanten wurden nun so verändert, daß sich bei allen bisher gefundenen Termen eine möglichst gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment ergab. Das führte zu den folgenden Werten für die Konstanten:

$$\left. \begin{aligned} F_2 &= 417,6 \text{ cm}^{-1} \\ F_4 &= 0,1643 F_2 \\ F_6 &= 0,01761 F_2 \\ \zeta &= 2150,7 \text{ cm}^{-1}. \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

Die mit diesen Werten der F_k und variablem ζ/F_2 berechneten Kurven zeigt Fig. 1. Die Kennzeichnung der Terme erfolgt durch die RS-Symbole der Terme, aus denen sie für $\zeta = 0$ hervorgegangen sind, mit einem zusätzlichen Strich, der die Tatsache andeutet, daß es sich um mittlere Kopplung handelt. Mit dem linken unteren Index werden die mehrfach auftretenden Terme mit gleichem J , bei dem mit der niedrigsten Energie mit 1 beginnend, numeriert.

Zum Vergleich der berechneten und der experimentell gefundenen Terme wurden die Termschwerpunkte im Äthylsulfat benutzt, wie sie sich für die Gruppen D bis I aus der Arbeit¹ ergeben. Die Werte für die Gruppen B und C stammen aus den oben erwähnten laufenden Untersuchungen in unserem Institut, während für A und A' die von GOBRECHT⁹ am Sulfat gemessenen Werte benutzt wurden. Der Schwer-

⁷ JUDD, B. R.: Proc. Roy. Soc. Lond. A **228**, 120 (1955).

⁸ BLEANEY, B.: Proc. Phys. Soc. Lond. A **68**, 937 (1955).

⁹ GOBRECHT, H.: Ann. Phys. (5) **28**, 637 (1937).

punkt des Grundterms wird bei 120 cm^{-1} angenommen, da im Experiment bisher noch nicht alle Grundtermkomponenten gefunden wurden.

Entscheidende Voraussetzung für den Vergleich ist, daß die Bindungsenergie im Kristall für alle Terme die gleiche ist und daß die

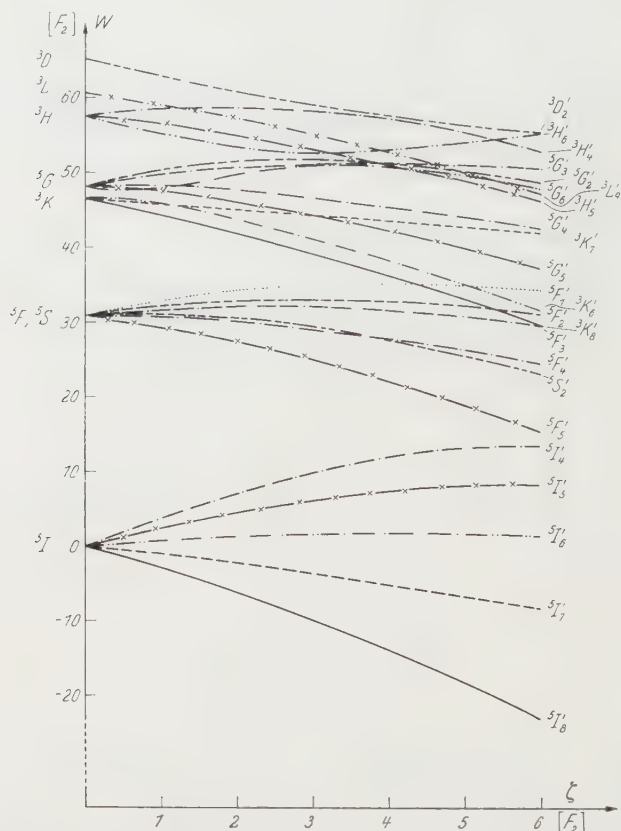


Fig. 1. Verlauf der berechneten Energie W der Terme des Ho^{3+} -Ions in Abhängigkeit von der Spin-Bahn-Kopplungskonstanten ζ ; W und ζ sind in Einheiten des Slater-Integrals F_2 ausgedrückt. Terme mit gleichem J sind mit gleichen Markierungen eingezeichnet. $J=1$, --- $J=2$, - - - $J=3$, ···· $J=4$, - - - $J=5$, --- $J=6$, - - - $J=7$, — $J=8$, —·—·— $J=9$

Kristallfeldaufspaltung zu keiner Verschiebung der Termschwerpunkte führt. Da die Terme zum Teil nahe beieinanderliegen, können solche Verschiebungen durch Effekte 2. Näherung durchaus auftreten. Die Tabelle zeigt die bisher für das Holmium gefundenen Energien der Terme und die für $\zeta/F_2=5,15$ d.h. $\zeta=2150,7 \text{ cm}^{-1}$ berechneten Werte. Es besteht völlige Übereinstimmung in den J -Werten, und die Abweichungen in den Energien überschreiten in keinem Falle 120 cm^{-1} ; diese Abweichungen in den Energien sind nicht größer als in vergleich-

Tabelle. Die Terme des Ho^{3+} -Ions

Term	Be- rechnete Energie in cm^{-1}	Bisherige Term- bezeichnung	Experi- mentelle Energie in cm^{-1}	Experi- menteller J -Wert	Term	Be- rechnete Energie in cm^{-1}	Bisherige Term- bezeichnung	Experi- mentelle Energie in cm^{-1}	Experi- menteller J -Wert
$^5I_8'$	—	5I_8	120	8	$^3G_4'$	35 195			
$^5I_7'$	5030	A'	5030		$^3D_3'$	35 870			
$^5I_6'$	8630	A	8530		$^1L_8'$	36 290			
$^5I_5'$	11 195	B	11 140		$^3P_0'$	36 710			
$^5I_4'$	13 290	C	13 250		$^3F_4'$	36 785			
$^5F_5'$	15 440	D	15 425	5	$^3P_2'$	36 855			
$^5S_2'$	18 260	E_I	18 375	2	$^3G_5'$	37 405			
$^5F_4'$	18 560	E_{II}	18 520	4	$^3L_7'$	37 700			
$^5F_3'$	20 565	F	20 560	3	$^3I_7'$	38 240			
$^5F_2'$	21 120	E	21 035	2	$^3F_2'$	38 605			
$^3K_8'$	21 410	H	21 305	8	$^3M_9'$	38 670			
$^3K_6'$	22 250	I	22 300		$^3I_5'$	39 270			
$^5F_1'$	22 350				$^1G_4'$	39 395			
$^5G_5'$	24 135				$^3F_3'$	40 290			
$^5G_4'$	26 130				$^3P_1'$	40 450			
$^3K_7'$	26 230				$^3I_6'$	40 690			
$^3H_5'$	28 065				$^5D_4'$	41 875			
$^5G_6'$	28 330				$^1D_2'$	42 085			
$^3L_9'$	28 500				$^5D_0'$	42 715			
$^5G_2'$	28 656				$^5D_3'$	43 110			
$^5G_3'$	28 990				$^5D_1'$	43 360			
$^3H_6'$	30 390				$^3M_8'$	45 345			
$^3H_4'$	30 775				$^3F_4'$	45 460			
$^3D_2'$	31 105				$^5D_2'$	46 180			
$^3M_{10}'$	33 425				$^1I_6'$	46 265			
$^3G_3'$	33 935				$^3H_5'$	47 925			
L_8'	33 955				$^3F_3'$	48 275			
$^3D_1'$	33 965								

baren Arbeiten^{10,11,12}. Die angegebene Zuordnung kann daher als richtig angesehen werden.

Die Lage der Quintett-Terme wird im wesentlichen allein durch die Konstante F_2 bestimmt, während für die Berechnung der Lagen der Triplett-Terme und der Singulett-Terme entscheidend auch die Konstanten F_4 und F_6 nötig sind. Da bisher erst ein Triplett-Term mit Sicherheit gefunden wurde, ist es nicht sicher, ob die oben angegebenen Werte für die Konstanten nicht noch etwas verändert werden müssen, wenn durch das Experiment weitere Triplett- und Singulett-Terme gefunden sind. Zu diesem Zweck sind in unserem Institut Untersuchungen am Holmium im ultravioletten Spektralgebiet im Gange.

Mein Dank gilt Herrn Professor HELLWEGE und Herrn Dr. KAHLE für wertvolle Diskussionen, Herrn cand. phys. URBAN für die Durchführung der Rechnungen an den Rechenautomaten sowie dem AEG Forschungsinstitut in Frankfurt, der Firma C. Freudenberg in Weinheim und dem Institut für Praktische Mathematik in Darmstadt für die Überlassung von Rechenzeit.

¹⁰ SPEDDING, F. H.: Phys. Rev. **58**, 255 (1940).

¹¹ WYBOURNE, B. G.: J. Chem. Phys. **32**, 640 (1960).

¹² KAHLE, H. G.: Z. Physik **161**, 486 (1961).

Aus dem Institut für Angewandte Physik der Universität Tübingen

Ein Biprisma-Interferometer für Elektronenwellen und seine Anwendung

Von

M. KELLER

Mit 10 Figuren im Text

(Eingegangen am 27. März 1961)

Zwischen den beiden Teilbündeln eines elektronenoptischen Biprisma-Interferometers wird durch ein stufenförmiges Phasenobjekt ein Gangunterschied hervorgerufen. Aus der Verschiebung der Interferenzstreifen kann der elektronenoptische Brechungsindex und damit das innere Potential des Objektmaterials ermittelt werden. Im Interferometer können die Messungen bei geringer Objektbelastung und an einer großen Anzahl von Interferenzstreifen durchgeführt werden.

Das Phasenobjekt besteht aus einer Trägerfolie, auf die eine gleichmäßige Grundschicht und eine Stufenschicht im Hochvakuum aufgedampft worden sind. Das durch eine netzförmige Schablone erzeugte Stufenmuster bewirkt im Interferogramm eine sich periodisch wiederholende Verschiebung des Interferenzstreifensystems. Als Trägerfolie eignet sich besonders eine aufgedampfte Kohlefolie. Sind die Stufen ohne Grundschicht auf den Träger aufgedampft, so wird das Interferogramm durch die Kontaktspannung zwischen den beiden Materialien verändert. Dies wird an den Materialpaaren Kohle-Kupfer und Silber-Kupfer demonstriert.

Die gemessenen inneren Potentiale von aufgedampfter Kohle, Al, Cu, Ag und Au waren von der Dicke der Objekte, der Beschleunigungsspannung, der Intensität und Dauer der Bestrahlung während des Meßvorganges im Interferometer nicht abhängig, bei Ag und Au jedoch von der Aufdampfgeschwindigkeit. Eine wesentlich stärkere Objektbelastung als die bei den vorliegenden Untersuchungen im Interferometer verwandt kann zu Änderungen des inneren Potentials führen.

1. Einleitung

Seit der Übertragung des Young-Fresnelschen Biprisma-Interferenzversuches von der Lichtoptik in die Elektronenoptik durch G. MÖLLENSTEDT und H. DÜKER¹⁻³ bietet das dort eingeführte elektronenoptische Biprisma die Möglichkeit, in einfacher Weise mit zwei kohärenten Elektronenbündeln kontrastreiche Ferninterferenzen* zu erzeugen. Hierbei kann, im Gegensatz zu anderen Verfahren⁴⁻⁶, der Winkel zwischen

* Zum Begriff der Ferninterferenzen s. ⁵.

¹ MÖLLENSTEDT, G., u. H. DÜKER: Naturwissenschaften **42**, 41 (1954).

² DÜKER, H.: Z. Naturforsch. **10a**, 256 (1955).

³ MÖLLENSTEDT, G., u. H. DÜKER: Z. Physik **145**, 377 (1956).

⁴ MITSUISHI, T., H. NAGASAKI and R. UYEDA: Proc. Japan. Acad. **27**, No. 2 (1951).

⁵ RANG, O.: Z. Physik **136**, 464 (1953).

⁶ MARTON, L., J.A. SIMPSON and J.A. SUDDETH: Phys. Rev. **90**, 490 (1953).

den interferierenden Bündeln und damit der Abstand der parallelen Interferenzstreifen in weiten Grenzen variiert werden. Die beiden Bündel sind einige μ voneinander entfernt, so daß sie einzeln beeinflußt werden können. Damit sind die Voraussetzungen für Interferometerversuche mit Elektronenwellen gegeben. Schon früher konnte gezeigt werden⁷, daß ein in den Strahlengang eingeführtes Phasenobjekt eine meßbare Verschiebung der Interferenzstreifen hervorruft. Weiter hatte sich ergeben, daß stufenförmige dünne Schichten, durch Schablonenbedampfung im Vakuum hergestellt, günstige Phasenobjekte darstellen. Als erstes Beispiel wurden Streifenverschiebungen durch ein Objekt aus aufgedampftem Kohlenstoff gezeigt und daraus das innere Potential von Kohlenstoff ermittelt. Die vorliegende Arbeit berichtet im Anschluß daran über weitere interferometrische Beobachtungen und Messungen, über den Aufbau des Interferometers und die Herstellung der Phasenobjekte. Die günstigen Eigenschaften des elektronenoptischen Biprismas hatten zur Folge, daß dieses in der Zwischenzeit mehrfach als Bauelement für Elektronen-Interferometer^{8,9} und Elektronen-Interferenzmikroskope¹⁰⁻¹⁵ eingesetzt worden ist.

2. Das Biprisma-Elektronen-Interferometer

a) Strahlengang. Das elektronenoptische Biprisma wird von einer strichförmigen Elektronensonde beleuchtet, deren Strichbreite b so fein sein muß, daß die interferierenden Strahlen innerhalb des Winkelbereiches 2ϑ liegen, der durch die geometrische Winkelkohärenz-Bedingung $b \sin \vartheta \ll \lambda/2$ gegeben ist (λ = Elektronenwellenlänge). Die beiden Teilbündel, die wie in Fig. 1a links und rechts den positiv geladenen Biprismafaden passieren, werden in dessen elektrischem Feld umgelenkt und erzeugen innerhalb des Überlagerungsgebietes Zweistrahlinterferenzen. Das auf dem Schirm entstehende Interferenzfeld besteht aus parallelen Interferenzstreifen; in der optischen Mittelebene liegt das Maximum nullter Ordnung. In diesen Strahlengang wird, wie Fig. 1b zeigt, ein stufenförmiges Phasenobjekt mit der Stufenhöhe d

⁷ MÖLLENSTEDT, G., u. M. KELLER: Z. Physik **148**, 34 (1957).

⁸ KELLER, M.: IV. Int. Kongr. f. Elektr. Mikr. 1958, S. 230. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1960.

⁹ LANGBEIN, W.: Naturwissenschaften **45**, 510 (1958).

¹⁰ MÖLLENSTEDT, G., u. R. BUHL: Phys. Bl. **13**, 357 (1957).

¹¹ FAGET, J., et CH. FERT: C. R. Acad. Sci. Paris **244**, 2368 (1957).

¹² FAGET, J., et CH. FERT: Cah. Physique **83**, 285 (1957).

¹³ BUHL, R.: IV. Int. Kongr. f. Elektr. Mikr. 1958, S. 233. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1960.

¹⁴ FERT, CH., u. J. FAGET: IV. Int. Kongr. f. Elektr. Mikr. 1958, S. 234. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1960.

¹⁵ BUHL, R.: Z. Physik **155**, 395 (1959).

und dem elektronenoptischen Brechungsindex n eingeführt. Der entstehende Gangunterschied $\Delta = (n-1)d$ verschiebt die Interferenzstreifen innerhalb des Interferenzfeldes F nach der Seite. Wird die Spannung am Biprismafaden erhöht, so verstärkt sich die Brechkraft des Biprismas, und die Teilbündel überschneiden sich schon oberhalb des Objektes: Fig. 1c. In diesem Falle treten verschobene Interferenzstreifen nur in dem Teilgebiet T auf, während in den beiden äußeren Gebieten des Interferenzfeldes die Streifen dieselbe unverschobene Lage

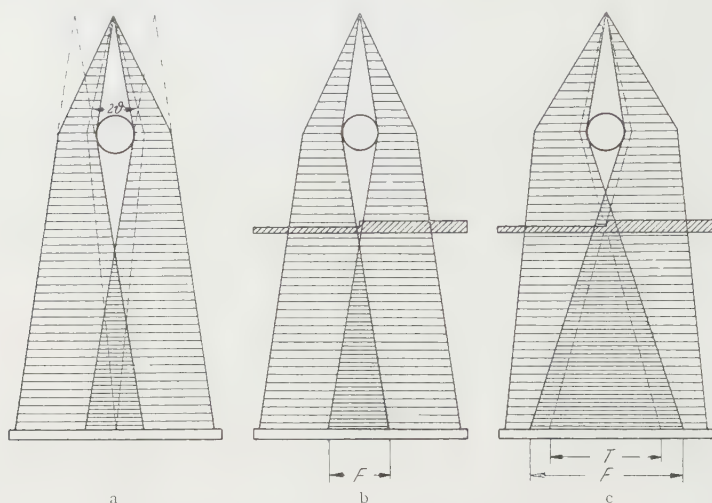


Fig. 1. a Biprisma-Strahlengang ohne Objekt; b die Teilbündel überschneiden sich hinter dem Phasenobjekt; c die Teilbündel überschneiden sich vor dem Phasenobjekt

wie ohne Objekt haben. Die Eigenschaften des Biprisma-Interferometers wurden in lichtoptischen Modellversuchen geprüft und bestätigt.

Zwischen der Streifenverschiebung s , dem Streifenabstand a , dem Gangunterschied $\Delta = (n-1)d$ und der Wellenlänge λ_{vak} besteht der Zusammenhang $(n-1)d/\lambda_{\text{vak}} = s/a$. Durch Variation von Stufenhöhe und Objektmaterial kann der Gangunterschied zwischen den beiden Teilbündeln systematisch verändert werden.

b) Beschreibung der Versuchsanordnung. Durch 1800fache Verkleinerung des engsten Strahlenquerschnittes einer Rogowski-Kathode^{16, 17} mittels zweier Zylinderlinsen entstand eine strichförmige Elektronensonde von etwa 200 Å Breite, die das elektronenoptische Biprisma aus 140 mm Entfernung beleuchtete. Bei allen interferometrischen Messungen war die Bedingung $b \sin \theta < 0,1\lambda$ und damit die Winkelkohärenzbedingung erfüllt. Der etwa 1 μ dicke Biprismafaden bestand aus Quarz, er wurde durch Vakuumbedampfen mit Gold leitend gemacht. Das Phasenobjekt war 55 mm unterhalb des Biprismas dreh- und verschiebbar angeordnet.

¹⁶ ROGOWSKI, W., u. W. GRÖSSER: Arch. Elektrotechn. **15**, 377 (1925).

¹⁷ BRICKA, M., et F. BRUCK: Ann. Radioelectr. **3**, 339 (1948).

Ein aus zwei Zylinderlinsen bestehendes Projektiv vergrößerte den Abstand der Interferenzstreifen in einer 330 mm vom Biprisma entfernten Ebene 800fach auf den Leuchtschirm bzw. den photographischen Film. Eine 25 mm unterhalb des Objektes liegende Hilfslinse stand zu den anderen Zylinderlinsen senkrecht und bildete die senkrecht zum Faden verlaufenden Konturen in 33facher Vergrößerung auf den Leuchtschirm ab. Dadurch erschien der senkrecht zum Faden verlaufende

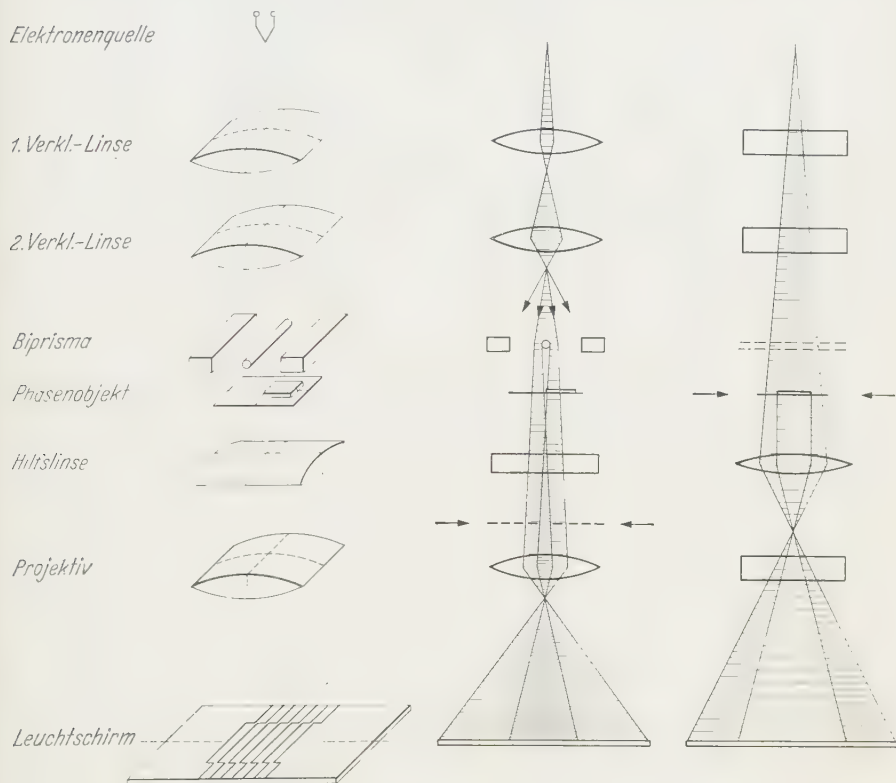


Fig. 2. Anordnung der Elemente des Elektronen-Interferometers und Schnitte durch den Strahlengang senkrecht zum Faden und in Fadenrichtung. Die Konturen der durch Pfeile gekennzeichneten Ebenen werden durch die Zylinderlinsen auf den Leuchtschirm abgebildet

Rand der Objektstufe auf dem Leuchtschirm als scharfe Grenze zwischen unverschobenen und verschobenen Streifen, was die Auswertung des Interferogrammes erleichterte. In Fig. 2 sind links die Anordnung der elektronenoptischen Elemente, rechts zwei Schnitte durch den Strahlengang, von vorne und von der Seite aus gesehen, dargestellt. Die durch Pfeile dargestellten Ebenen werden auf den Leuchtschirm abgebildet. Unterhalb des klappbaren Leuchtschirms befand sich eine Robot-Kamera ohne Objektiv, mit der 24 Bilder auf Kleinbildfilm festgehalten werden konnten. Zur Aufnahme wurde der Verschuß der Kamera betätigt.

Die elektrostatischen Zylinderlinsen hielten Spannungen bis 40 kV. Ihre Brennweiten konnten durch Abgreifen von Teilen der Kathodenspannung an einem

Hochspannungspotentiometer passend gewählt werden. Die Linsenspannungen lagen zwischen 0 und 65% der Kathodenspannung; dadurch waren Strahlspannungen von 60 kV möglich.

c) **Messung innerer Potentiale.** Die interferometrische Messung des inneren Potentials unterscheidet sich wesentlich von früheren Meßmethoden, welche die Ablenkung von Elektronenbeugungs-Reflexen zur Grundlage hatten¹⁸. Dort waren nur regelmäßig gebaute Einkristalle als Objekte möglich, während hier polykristalline Aufdampfschichten verwendet werden können. Der Elektronenstrahl durchsetzt das planparallele Objekt wegen des senkrechten Einfalls ohne Strahlablenkung. Das innere Potential Φ des Objektes bewirkt jedoch eine Änderung der Wellenlänge innerhalb des Objektes und damit einen Gangunterschied, der gemessen wird. Es ergeben sich, wenn Φ klein gegen die Beschleunigungsspannung U ist, folgende Werte:

Wellenlänge:

$$\lambda_{\text{vak}} = \frac{h}{mv} = \frac{h}{\sqrt{2em_0U^*}}.$$

Relativistisch korrigierte Beschleunigungsspannung:

$$U^* = U(1 + \alpha U)$$

mit

$$\alpha = \frac{e}{2m_0c^2} = 0,9788 \cdot 10^{-6} \text{ V}^{-1}.$$

Brechungsindex:

$$n = \sqrt{\frac{(U + \Phi)^*}{U^*}} \approx 1 + \frac{\Phi}{2U} \frac{1 + 2\alpha U}{1 + \alpha U}.$$

Relative Streifenverschiebung:

$$\frac{s}{a} = \frac{(n-1)d}{\lambda_{\text{vak}}} = \frac{1 + 2\alpha U}{\sqrt{1 + \alpha U}} \frac{\sqrt{2em_0}}{2h} \frac{\Phi d}{\sqrt{U}}.$$

Inneres Potential:

$$\Phi = \frac{\sqrt{1 + \alpha U}}{1 + 2\alpha U} \frac{2h}{\sqrt{2em_0}} \frac{\sqrt{U}}{d} \frac{s}{a}.$$

Wegen $\frac{v}{c} = \frac{2\sqrt{\alpha U(1 + \alpha U)}}{1 + 2\alpha U}$ kann man dafür auch einfacher $\Phi = \frac{hv}{cd} \frac{s}{a}$ schreiben. Diese Formeln gehen in ihre nichtrelativistischen Näherungsdrücke über, wenn man $\alpha \rightarrow 0$ gehen läßt.

Nach Einsetzen der Zahlenwerte ist

$$\Phi = \frac{\sqrt{1 + \alpha U}}{1 + 2\alpha U} 24,52 \frac{\sqrt{U}}{d} \frac{s}{a} \text{ \AA}^{-1} \text{ V}^{\frac{1}{2}}.$$

¹⁸ RAETHER, H.: Handbuch der Physik, Bd. XXXII, S. 443. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1957.

Der relativistische Korrekturfaktor $(1 + \alpha U)^{1/2} / (1 + 2\alpha U)$ hat für die Spannungen 20; 40; 60 kV die Werte 0,972; 0,946; 0,922. Bei einer Strahlspannung von 60 kV beträgt die Korrektur also fast 8%.

d) **Einfluß von Schrägstellung und Wölbung des Objekts.** Ein plan-paralleles Objekt wird im Biprisma-Interferometer nicht genau senkrecht durchsetzt, sondern unter einem kleinen Einfallswinkel α , der durch die gegenseitige Neigung der beiden Teilbündel entsteht, durchstrahlt. Es läßt sich leicht zeigen, daß die dadurch entstehende Parallelversetzung der Strahlen auch in ungünstigen Fällen gegen den Interferenzstreifenabstand vernachlässigbar ist. Die Durchstrahlungsdicke, die $1/\cos\alpha$ proportional ist, ändert sich bei geringer Neigung nur so wenig, daß auch dieser Einfluß bei der Messung innerer Potentiale nicht berücksichtigt zu werden braucht.

Wird dagegen eine gekrümmte Folie schief durchstrahlt, so durchtritt der Strahl zwei nicht parallele Grenzflächen. Er wird daher beim Eintritt um einen anderen Winkel gebrochen als beim Austritt. Als Differenz bleibt eine, wenn auch geringe, Änderung der Strahlrichtung. Der Fig. 3 ist zu entnehmen, wie die Umlenkung entsteht. Nach dem Brechungsgesetz gilt, wenn wir $n = 1 + u$ setzen,

$$\frac{\sin \alpha_0}{\sin \alpha_1} = 1 + u; \quad \frac{\sin \alpha_3}{\sin \alpha_2} = 1 + u$$

und nach dem Sinussatz

$$\frac{\sin \alpha_1}{\sin \alpha_2} = \frac{R}{R + D}.$$

Mit Hilfe dieser Beziehungen lassen sich α_1 , α_2 und α_3 durch α_0 , u und $\frac{D}{R}$ ausdrücken, und für den Ablenkswinkel gilt

$$\begin{aligned} \varphi = \alpha_3 - \alpha_2 + \alpha_1 - \alpha_0 &= \arcsin \left[\left(1 + \frac{D}{R} \right) \sin \alpha_0 \right] - \\ &- \arcsin \left[\frac{1 + D/R}{1 + u} \sin \alpha_0 \right] + \\ &+ \arcsin \left[\frac{1}{1 + u} \sin \alpha_0 \right] - \alpha_0. \end{aligned}$$

Die Entwicklung nach Potenzen von $\frac{D}{R}$ und u liefert

$$\varphi = \frac{D}{R} u \frac{\operatorname{tg} \alpha_0}{\cos^2 \alpha_0} + \text{Glieder von 3. und höherer Ordnung in } \frac{D}{R} \text{ und } u.$$

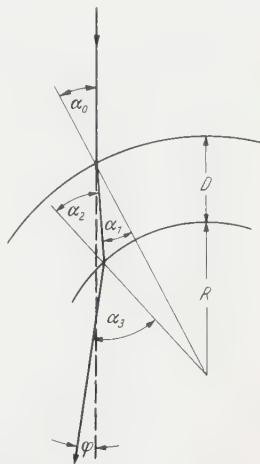


Fig. 3. Richtungsänderung des Elektronenstrahls beim Durchgang durch eine gewölbte Folie

Als Beispiel seien folgende Werte eingesetzt: Foliendicke $D = 300 \text{ \AA}$; Krümmungsradius $R = 1 \mu$; Einfallswinkel $\alpha_0 = 10^\circ$; inneres Potential $\Phi = 20 \text{ V}$; Beschleunigungsspannung $U = 40 \text{ kV}$; daraus $n = 1 + 2,5 \times 10^{-4}$. Die Rechnung ergibt $\varphi = 1,35 \cdot 10^{-6} \text{ rad}$. Infolge der Ablenkung hat der Strahl in der 275 mm entfernten Zwischenbildebene eine Fehllage von $0,37 \mu$. Dies bedeutet bei den zur Messung verwendeten Streifenabständen von $0,1$ bis $0,3 \mu$ eine erhebliche Störung.

Die Phasenobjekte müssen daher so präpariert werden, daß sie sehr plan gespannt sind. Dadurch entsteht gegenüber der elektronenmikroskopischen Präparation eine zusätzliche, erschwerende Forderung.

e) **Objektbelastung durch die Elektronenstrahlen und Zahl der auswertbaren Interferenzstreifen.** Im Elektroneninterferometer werden die zum Biprismafaden senkrechten Objektkonturen im Maßstab 33:1 auf den Leuchtschirm abgebildet. In der dazu senkrechten Richtung erfolgt von der Sonde aus zunächst eine Projektion im Verhältnis 2,4:1 in die Zwischenbildebene. Die Projektive geben eine 800fache Nachvergrößerung auf 1900:1. Die Stromdichte im Objekt ist daher um den Faktor $6,3 \cdot 10^4$ höher als im Endbild. Die Objektbelastung bei der Messung innerer Potentiale ist gegenüber derjenigen im Elektronen-Interferenzmikroskop, das mit rotationssymmetrischen Linsen arbeitet und für das von R. BUHL¹⁵ laterale Vergrößerungen von 1000, 2000 bzw. 8000-fach angegeben werden, um den Faktor 16, 64 bzw. 1000mal geringer, wenn man gleiche Bildhelligkeiten voraussetzt. Es hat sich ergeben, daß die Bestrahlung im Elektronenmikroskop bei 5000facher Vergrößerung trotz geringer Bildhelligkeit das innere Potential verändern kann. Die Messung innerer Potentiale bei geringer Belastung ist daher wünschenswert. Wegen des geringeren Verhältnisses der Stromdichten im Objekt und in der Registrierebene kann bei gleichen Richtstrahlwerten der Strahlerzeuger und gleichen Intensitäten in den Registrierebenen von Interferenzmikroskop und Interferometer in dem letzteren eine wesentlich schmalere Strichsonde verwendet werden. Dadurch wird ohne Verletzung der Kohärenzbedingung ein größerer Winkelbereich 2ϑ zulässig. Es kann somit eine größere Zahl von Interferenzstreifen beobachtet werden, was zu einer Verkleinerung des mittleren Fehlers bei der Ausmessung der Streifenverschiebungen führt.

3. Phasenobjekte

a) **Herstellung der Objekte.** Die Phasenobjekte wurden durch senkrechte Bedampfung einer Trägerfolie aus 30 cm Abstand im Hochvakuum bei einem Druck von $p < 2 \cdot 10^{-5} \text{ Torr}$ hergestellt. Als Heizkörper dienten Wolframschiffchen bzw. Schlingen aus Wolframdraht. Zur Vermeidung von Unreinheiten wurden die Quellen mit einer Glas-

platte so lange abgedeckt, bis ein Niederschlag anzeigte, daß die Verdampfung bereits im Gange war.

Die Trägerfolien aus Lack oder Kohlenstoff waren über Lochblenden von 0,4 bis 0,7 mm Bohrungsdurchmesser gespannt. Aus einer Verdampferquelle wurden die Folien zunächst mit einer gleichmäßig dicken Grundschicht des zu messenden Materials bedampft. Aus einer zweiten Quelle wurden dann die Objektstufen aus dem selben Material aufgebracht. Dabei diente ein 50 μ -Netz als Schablone. Fig. 4 stellt den Aufbau eines Phasenobjektes dar. Die Verwendung eines Netzes als Aufdampfschablone vermeidet eine zeitraubende Zielpräparation ein-

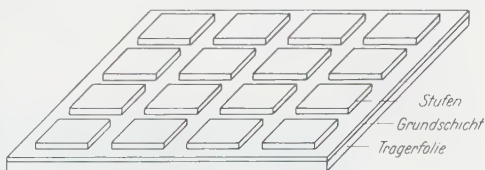


Fig. 4. Aufbau eines Phasenobjektes

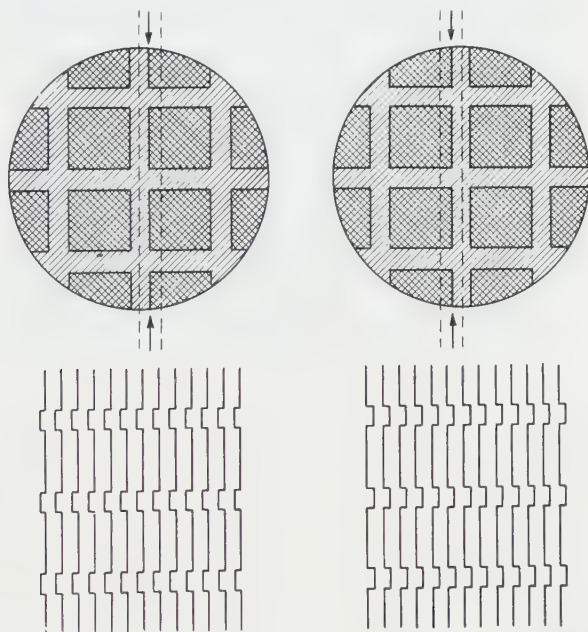


Fig. 5. Zwei Meßstellungen des Phasenobjektes mit den zugehörigen Interferenzmustern. Die optische Mittelebene ist durch Pfeile, der durchstrahlte Bereich durch gestrichelte Linien markiert

zelner Stufen und gibt die für das Interferometer erforderliche rechteckige Stufenform. Ferner ist günstig, daß sich die Stufen innerhalb des Objektfeldes regelmäßig wiederholen. Im Interferogramm entstehen dadurch bandförmige Bereiche, in denen sich unverschobene und verschobene Interferenzstreifen abwechselnd gegenüberstehen. Dies veranschaulicht Fig. 5. Hier ist mit verringerter Stufenzahl dargestellt,

wie bei verschiedenen Stellungen des Objektes die Streifenversetzung erfolgt. Das zur Interferenz ausgenutzte Objektgebiet ist gestrichelt eingetragen und die optische Mittelebene durch Pfeile gekennzeichnet. In den schmalen, hellen Bändern des Interferogrammes sind die Streifen unverschoben, da beide Bündel die gleiche Dicke der Grundschrift durchlaufen haben. In den breiten, dunklen Bändern treten dagegen die verschobenen Streifen auf, denn dort hatte das eine Bündel nur die Grundschrift, das andere zusätzlich die Stufen zu durchlaufen. Fig. 6

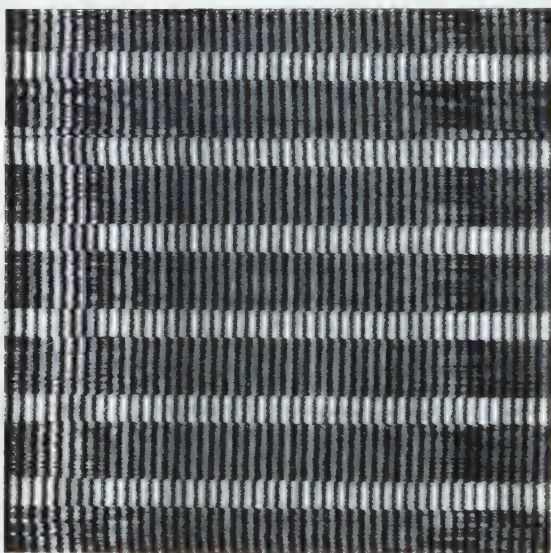


Fig. 6. Vollständiges Interferogramm zur Messung von Streifenverschiebung und Streifenabstand

bringt ein vollständiges Elektronen-Interferogramm. Man erkennt, daß die Streifen am linken und rechten Rand unverschoben und im mittleren Bereich um einen konstanten Wert gegeneinander verschoben sind. Dies entspricht völlig dem Befund des lichtoptischen Versuches gemäß Fig. 1c. Wegen der Beugungsunschärfe an der zum Faden parallelen Stufenkante entwickelt sich die Streifenverschiebung allmählich, so daß eine eindeutige Zuordnung der verschobenen zu den unverschobenen Streifen möglich ist.

b) Dickenmessung der Objekte. Die für die interferometrischen Messungen wichtigen Stufenhöhen der Objekte wurden lichtoptisch mittels Vielstrahl-Interferenzen nach S. TOLANSKY¹⁹ bestimmt. In der Aufdampfapparatur befand sich zu diesem Zweck dicht neben den Objekten

¹⁹ TOLANSKY, S.: Multiple Beam Interferometry of Surfaces and Films. Oxford: Clarendon Press 1948.

ein Planglas von 12 mm Durchmesser, das gemeinsam mit den Objektträgern mit Grund- und Stufenschicht bedampft wurde. Eine Schablone bewirkte eine stegförmige Unterbrechung der Stufenschicht an der Meßstelle. Die erforderliche Verspiegelung dieses Meßkörpers mit einer 1200 Å dicken Silberschicht geschah aus einer dritten Verdampferquelle bei abgedeckten Objekten.

Da sowohl die Stufenschicht auf Objekt und Meßkörper als auch die Silberschicht auf Stufenschicht und Grundschicht auf gleiche Unterlagen aufgedampft wurden, darf angenommen werden, daß die Messung der Stufenhöhe keinen systematischen Fehler enthielt. Dies gilt nicht für die einmal auf die Objektträgerfolie und einmal auf Glas aufgedampfte Grundschicht. Deren Dicke, die in die Rechnung zur Bestimmung des inneren Potentials nicht eingeht, wurde daher nur aus dem Verhältnis der verdampften Substanzmengen geschätzt.

Die Meßaufnahmen auf Kleinbilddfilm wurden unter dem Zeiss-Universal-Meßmikroskop ausgewertet, wobei die Verwendung der Rot-Grün-Doppelbild-Einrichtung besondere Vorteile bot. In einer Aufnahme konnten etwa 30 bis 50 Interferenzstreifen-Sprünge vermessen werden. Die Mittelwerte verschiedener Aufnahmen desselben Objektes wichen um höchstens 8 Å voneinander ab, meist war die Differenz wesentlich geringer.

c) Eignung verschiedener Trägerfolien. Die Trägerfolien der Phasenobjekte müssen ungewöhnlich hohen Anforderungen genügen. Sie müssen daher mit besonderer Sorgfalt hergestellt werden.

Damit die an den Objektblenden-Rändern entstehenden Störungen den mittleren Bereich des Interferenzmusters nicht beeinflussen, müssen Blendenbohrungen von 0,4 bis 0,7 mm Durchmesser frei überspannt werden. Wie aus Abschnitt 2.d hervorgeht, müssen die Objekte außerdem sehr plan sein. Weiter dürfen sie sich nicht aufladen, da sonst unkontrollierbare elektrische Felder innerhalb und außerhalb des Objektes auftreten können. Die drei ausprobierten Lackfolien aus Kolloidum, Formvar und Bedacryl 122 X²⁰ sind nichtleitend, sie zeigen im Elektronenstrahl fluktuierende Aufladungen, wie sie auch H. MAHL und W. WEITSCH²¹ in einem Elektronen-Schattenmikroskop beobachteten. Dadurch kamen die Interferenzstreifen in starke, unregelmäßige Bewegung. Eine ein- oder beidseitige Bedampfung mit Metall brachte das Streifensystem zur Ruhe. Allerdings traten auch dann noch Beeinflussungen des Objektes durch den Elektronenstrahl auf: Das Streuvermögen der Folien nahm mit zunehmender Intensität der Bestrahlung ab, was sich durch Verschieben der Folie relativ zum Biprisma-Schattenbereich zeigen ließ. Eine Abhängigkeit des Streuvermögens von der

²⁰ BRADLEY, D.E.: Brit. J. Appl. Phys. **5**, 65 (1954).

²¹ MAHL, H., u. W. WEITSCH: Naturwissenschaften **16**, 487 (1959).

Stromdichte wurde auch von F. LENZ und W. SCHEFFELS²² an Kolloidumfolien beobachtet, allerdings mit umgekehrtem Vorzeichen. Die Lackfolien haben den weiteren Nachteil, daß sie oft beim Bedampfen wellig werden. Trotz dieser Nachteile sind Objekte auf Lackfolien präpariert und die plan gebliebenen im Interferometer untersucht worden.

Bessere Ergebnisse erzielt man mit Kohlefolien, die durch Verdampfen von Spektralkohle nach dem Verfahren von D. E. BRADLEY²⁰ hergestellt werden. Diese sind mechanisch sehr widerstandsfähig, so daß beim Bedampfen keine Krümmungen entstehen. Die Leitfähigkeit der Schicht verhindert Aufladungserscheinungen. Von reinem Glas lösen

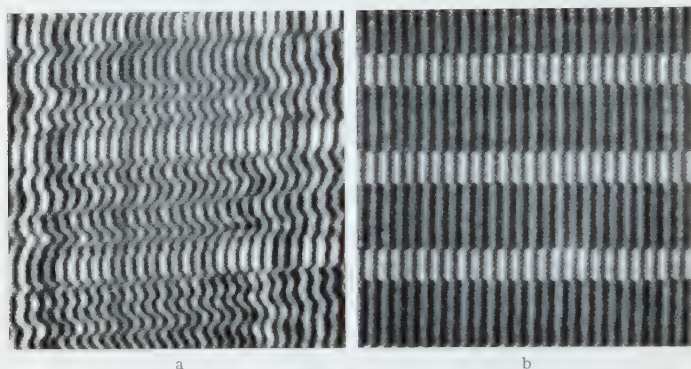


Fig. 7. a Interferenzmuster eines welligen Objektes, auf Kolloidium-Trägerfolie aufgedampft;
b Interferenzmuster eines plan gespannten Objektes, auf Kohle-Trägerfolie aufgedampft

sich Kohlefolien auch mit verdünnter Flußsäure nur fehlerhaft ab, die Folien enthalten außerdem meist Schlieren. Wird das Glas vor dem Bedampfen durch Eintauchen in ein Netzmittel (Faber Invitol, unverdünnt) mit einer wasserlöslichen Zwischenschicht überzogen, so schwimmen die Folien auf Wasser gut ab, der auf Blenden gespannte Film wird jedoch beim Einbringen in das Vakuum wellig. Die besten Kohleträger wurden mit einer Zwischenschicht aus Boroxyd zwischen Glasunterlage und Kohleschicht erzielt. 5 mg B_2O_3 , aus einem Schiffchen in 13 cm Entfernung verdampft, ergeben die geeignete Schichtdicke. Die Trägerfolien aus Kohle waren etwa 300 Å dick, sie blieben auch im Vakuum straff gespannt. In Fig. 7a und b sind die Interferenzmuster eines welligen und eines plan gespannten Objektes einander gegenübergestellt.

d) **Wirkung von Kontaktspannungen und ihre Beseitigung durch die Grundschrift.** Die Kontaktspannung zwischen dem Material des Phasenobjektes und dem der Trägerfolie wird durch die Grundschrift interferometrisch unwirksam gemacht, denn bei Vorhandensein der

²² LENZ, F., u. W. SCHEFFELS: Z. Naturforsch. 11a, 656 (1956).

Grundschicht werden beide Teilbündel von der Kontaktspannung in derselben Weise beeinflußt. Bei fehlender Grundschicht dagegen bildet sich durch die Kontaktspannung zwischen den Stufen und der Träger-

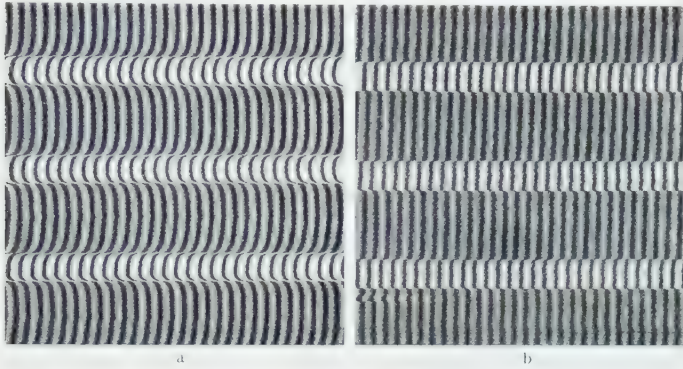


Fig. 8. a Die Kontaktspannung zwischen Kohleträger und Cu-Stufen bewirkt eine Verbiegung der Interferenzstreifen; b die Grundschicht zwischen Trägerfolie und Stufen hebt die Verbiegung auf

folie ein inhomogenes elektrostatisches Feld aus, dessen elektronenoptische Wirkung das Interferenzmuster in charakteristischer Weise verändert: Die Streifen verlaufen nicht mehr geradlinig (Fig. 8a). Hier wurden Cu-Stufen direkt auf die Kohle-Trägerfolie aufgedampft. Be-

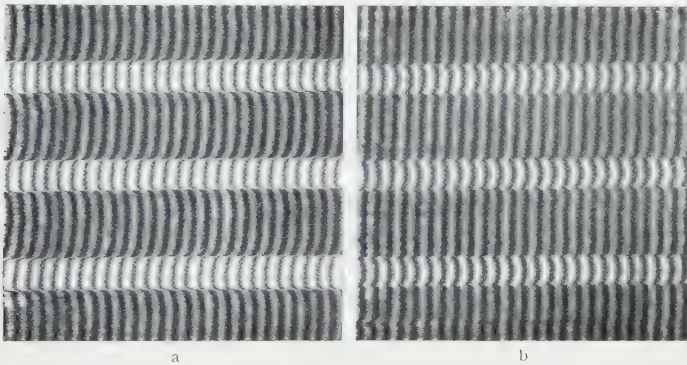


Fig. 9 a u. b. Einfluß der Kontaktspannung auf das Interferenzmuster. a Cu-Stufen auf Ag-Grundschicht; b Ag-Stufen auf Cu-Grundschicht

findet sich dagegen unter den Stufen eine Cu-Grundschicht von 25 \AA Dicke, so erfolgt die Streifenverschiebung, wie in Fig. 8b gezeigt ist, in der gewünschten Weise nur noch durch die Wirkung des inneren Potentials.

Andererseits können gerade die charakteristischen Verbiegungen der Interferenzstreifen als Nachweis für Kontaktspannungen dienen. Bestehen z. B. die Grundschicht aus Ag, die Stufen aber aus Cu, so ergibt sich das Muster der Fig. 9a. Die Streifenverbiegung unterstützt, wie

in Fig. 8a, den interferometrischen Streifensprung. Mit Cu als Grundschicht und Ag-Stufen dagegen erhält man die Fig. 9b. Die Streifenverbiegung ist nun so gerichtet, daß sie dem interferometrischen Sprung entgegenwirkt. Bei längerem Lagern des Objektes geht die Kontaktspannung, wahrscheinlich infolge von Diffusionserscheinungen, merklich zurück, das Interferogramm ist hierfür ein empfindlicher Nachweis. In Fig. 10 ist deutlich zu sehen, daß die Kontaktspannung des Objektes von Fig. 9b nach sechs Tagen auf einen kleineren Wert abgesunken war.

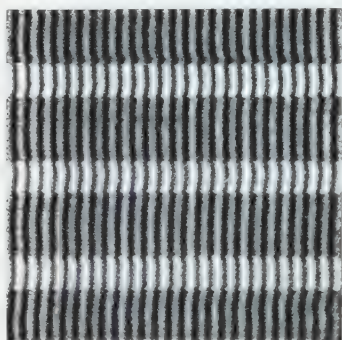


Fig. 10. Verminderte Kontaktspannung des Objektes aus Fig. 9b nach 6tägiger Lagerung

e) Meßwerte der inneren Potentiale.

Die Elektronen-Interferogramme wurden, wie die Tolansky-Aufnahmen, im Negativ unter dem Zeiss-Universal-Meßmikroskop mit Hilfe des Doppelbild-Verfahrens ausgewertet. Nur solche Streifensprünge wurden gemessen, bei denen die beiden Teile des verschobenen Interferenzstreifens in einer Geraden lagen, der unverschobene Streifen parallel dazu verlief und die Streifen

nicht durch Kontaktspannung verbogen waren. Der Streifenkontrast war bei der Verwendung dicker Objektstufen wegen der ungleichen Intensität der Teilbündel geringer als bei dünnen Stufen. Auch bei schlechtem Kontrast konnte der Mittelwert aus 10 Streifensprüngen mit 5 % Genauigkeit reproduziert werden.

Durch Variation der Versuchsbedingungen wurde geprüft, ob das innere Potential von der Dicke der Objekte, der Beschleunigungsspannung der Elektronen, der Bestrahlungsintensität und der Bestrahlungsdauer im Interferometer abhängt. Innerhalb der Meßgenauigkeit war keine derartige Abhängigkeit zu finden.

Dagegen hing das innere Potential von anderen Einflüssen ab. Die auf Lackträger präparierten Objekte ergaben andere Werte als die auf Kohleträger präparierten. Dies geht besonders aus dem Vergleich von Objektpaaren hervor, die durch simultane Bedampfung einer Lackfolie und einer Kohlefolie hergestellt wurden. Die angegebenen Mittelwerte des inneren Potentials berücksichtigen nur Objekte auf Kohleträgern, da bei Lackträgern Aufladungen wegen zu geringer Leitfähigkeit zu befürchten waren.

Bei einigen Substanzen kann die Aufdampfgeschwindigkeit das innere Potential beeinflussen. Schnell aufgedampft Ag ergab z.B. einen niedrigeren Wert für Φ als langsam aufgedampft. Bei der darauf folgenden Präparation von Au- und Al-Objekten wurden deshalb gleiche

Substanzmengen verschieden schnell aufgedampft. Im Gegensatz zu Al, das keinen erkennbaren Effekt zeigte, war bei Au das gemessene innere Potential stark von der Aufdampfgeschwindigkeit abhängig.

Die Au-Objekte wurden nach der Potentialmessung im elektrostatischen Elektronenmikroskop bei 5000facher Vergrößerung und geringer Bildhelligkeit untersucht. Dabei waren keine Strukturunterschiede zwischen den verschieden schnell aufgedampften Schichten zu bemerken. Eine nachfolgende erneute Messung des inneren Potentials ergab jedoch einen um etwa 3 V höheren Wert, so daß vermutet werden muß, daß sich die Schichten durch die Bestrahlung im Elektronenmikroskop verändert hatten. Weitere Versuche in dieser Richtung sind nicht unternommen worden. Die Aufdampfgeschwindigkeit wurde, mit den genannten Ausnahmen, konstant gehalten; eine Schicht mittlerer Dicke war in etwa 10 sec aufgebracht. Die Dicken von Grund- und Stufenschichten sind in Tabelle 1 mit D_g bzw. D_s bezeichnet.

Es erschien nicht sinnvoll, die an den verschiedenen Objekten gemessenen Werte mit den Anzahlen der ausgemessenen Streifensprünge als statistische Gewichte zu belegen. Dadurch würden ungewollte Unterschiede in den Herstellungsbedingungen nicht berücksichtigt. Die Einzelwerte sind als gleichberechtigt behandelt, auch wenn ihnen die Auswertung von nur wenigen Streifensprüngen zugrunde liegt. Die in Tabelle 1 angegebenen Fehler sind mittlere quadratische Abweichungen vom Mittelwert, auf ganze zehntel Volt gerundet.

f) Vergleich mit Messungen anderer Autoren. Die inneren Potentiale von Kohlenstoff, Al, Cu, Ag und Au sind nach verschiedenen Methoden auch von anderen Autoren bestimmt worden.

A. BÜHL²³, H. G. JENKINS²⁴, H. FARNSWORTH²⁵, W. E. LASCHKAREW, E. W. BÄRENGARTEN und G. A. KUZMIN²⁶, D. C. ROSE²⁷, E. RUPP²⁸, T. YAMAGUTI²⁹ und R. UYEDA³⁰ ermittelten innere Potentiale aus der Elektronenbeugung in Reflexion an Einkristallflächen. R. BÜHL¹⁵ und CH. FERT¹⁴ arbeiteten mit Elektronen-Interferenzmikroskopen. W. LANGBEIN⁹ benutzte das von uns angegebene Interferometerverfahren.

Die Ergebnisse dieser Autoren sind in der Tabelle 2 zusammengestellt. In der Spalte unter C (Kohlenstoff) sind außer Werten von nach

²³ BÜHL, A.: Phys. Z. **33**, 812 (1932).

²⁴ JENKINS, H. G.: Phil. Mag. **17**, 457 (1934).

²⁵ FARNSWORTH, H.: Phys. Rev. **40**, 684 (1932).

²⁶ LASCHKAREW, W. E., E. W. BÄRENGARTEN u. G. A. KUZMIN: Z. Physik **85**, 631 (1933).

²⁷ ROSE, D. C.: Phil. Mag. **6**, 712 (1928).

²⁸ RUPP, E.: Ann. d. Physik **1**, 801 (1929).

²⁹ YAMAGUTI, T.: Proc. Phys. Math. Soc. Japan **4**, 315 (1932).

³⁰ UYEDA, R.: Proc. Phys. Math. Soc. Japan **20**, 280 (1938).

Tabelle 1. Messung der inneren Potentiale mit dem Elektronen-Interferometer

Material	Trägerfolie	D_g (Å)	D_s (Å)	Zahl der Meß- werte	Φ (V)	Bemerkungen
Cu	Kohle	0	100	—	Störung durch Kontaktspannung	
	Kohle	25	92	90	24,2	verschiedene Grundschichtdicken
	Kohle	50	103	160	23,1	
	Kohle	75	108	710	24,4	
	Kohle	100	100	420	23,5	
	{ Kohle	125	74	60	20,9	Simultanbedampfungen
	{ Kollodium	125	74	20	(22,1)	
	{ Kohle	110	180	60	24,8	
	{ Kollodium	110	180	20	(23,4)	
	{ Kohle	250	247	50	23,6	
	{ Kollodium	250	247	940	(20,3)	
Messungen an Kupfer					23,5 ± 0,6	Mittelwert
Ag	Kohle	150	138	230	21,8	Simultanbedampfung
	{ Kollodium	150	138	70	(26,0)	
	Kohle	150	255	240	20,8	schnell aufgedampft
	Kohle	150	123	30	17,0	
Messungen an Silber					17,0 ÷ 21,8	je nach Aufdampfgeschwindigkeit
Au	Formvar	120	117	270	(25,4)	
	Kohle	40	35	120	27,0	
	Kohle	80	143	200	25,9	
	Kohle	75	75	240	25,2	verschiedene Aufdampf- geschwindigkeiten
	Kohle	110	113	150	23,9	$t > 2$ min
	im EM bestrahlt		40	(27,0)		$t = 58$ sec
	Kohle	140	142	130	22,1	$t = 15$ sec
	Kohle	145	145	120	25,6	$t = 9$ sec
	Kohle	150	143	220	25,8	$t = 8$ sec
Messungen an Gold					22,1 ÷ 27,0	je nach Aufdampfgeschwindigkeit
Al	Bedacryl	75	109	460	(11,7)	
	Bedacryl	80	115	970	(11,3)	
	Kohle	115	351	100	12,3	
	Kohle	95	187	240	13,4	verschiedene Aufdampf- geschwindigkeiten
	Kohle	100	198	40	13,1	$t = 40$ sec
	Kohle	115	234	170	13,3	$t = 18$ sec
						$t = 13$ sec
Messungen an Aluminium					13,0 ± 0,4	Mittelwert
C	Kohle		174	50	7,8	verschiedene Stufenhöhen, Grundschichtdicke nicht gemessen
	Kohle		181	100	7,1	
	Kohle		224	120	8,9	
	Kohle		311	80	7,5	
Messungen an Kohle					7,8 ± 0,6	Mittelwert

Tabelle 2. *Innere Potentiale in Volt; Meßergebnisse verschiedener Autoren*

Autor	C	Al	Cu	Ag	Au
BÜHL				0 ± 2	
JENKINS	$11,7^*$				
FARNSWORTH . .			$0 \div 31$	$0 \div 24$	
LASCHKAREW . .	20^*				
ROSE		$3 \div 4$			
RUPP		17 ± 3	14 ± 3	14 ± 3	14 ± 3
YAMAGUTI	$11,5^*$				
UYEDA	$13,0^*$				
BUHL		$11,6 \pm 1$		$19,4 \pm 0,7$	$19,7 \pm 1,9$
FERT	$11 \pm 3^*$				
LANGBEIN	$14,2 \pm 1,0$				
Verfasser	$7,8 \pm 0,6$	$13,0 \pm 0,4$	$23,5 \pm 0,6$	$17 \div 22^{**}$	$22 \div 27^{**}$

* Gemessen an Graphiteinkristallen.

** Je nach Aufdampfgeschwindigkeit.

BRADLEY aufgedampftem Kohlenstoff noch solche von Graphit-Kristallen angegeben. Diese sind durch das Zeichen * kenntlich gemacht.

R. BUHL berechnete seine Werte ohne Berücksichtigung des relativistischen Korrekturfaktors. Seine Messungen erfolgten bei Beschleunigungsspannungen von 45 bis 50 kV. Die von ihm mitgeteilten Zahlen sind daher zum besseren Vergleich mit dem Faktor 0,936 (für 47,5 kV) korrigiert worden. Bei CH. FERT ist die relativistische Korrektur berücksichtigt. Nach welcher Formel W. LANGBEIN die inneren Potentiale berechnete, geht aus seiner Arbeit nicht hervor. Die übrigen Autoren arbeiteten mit niederen Beschleunigungsspannungen, bei denen die Korrektur vernachlässigbar ist.

Die interferometrisch gewonnenen Werte von Al und Ag stimmen innerhalb der Fehlergrenzen überein. Die Abweichungen der Kohlenstoffwerte des Verfassers von denen W. LANGBEINS sind noch nicht geklärt. Der früher⁷ von uns mit Vorbehalt angegebene Wert von 24 V ist jedoch zu hoch. Inzwischen ist nämlich durch K. GRAFF³¹ nachgewiesen worden, daß die zur Dickenbestimmung benutzte Eichkurve von A.W. AGAR³², welche die Absorption weißen Lichtes als Funktion der Schichtdicke wiedergibt, korrekturbedürftig ist. Ferner zeigten die damaligen Interferogramme noch störende Streifenverbiegungen, die auf wellige Phasenobjekte zurückzuführen waren. Diese Fehlerquellen sind bei den neuen Messungen vermieden worden. Die Abweichungen der interferometrischen Werte von Au können als Folge unterschiedlicher Schichtstrukturen gedeutet werden. Daß Au hierfür empfindlich ist, zeigt sich am Beispiel des Einflusses der Aufdampfgeschwindigkeit.

³¹ GRAFF, K.: Optik **18**, 120 (1961).

³² AGAR, A.W.: Brit. J. Appl. Phys. **8**, 35 (1957).

g) **Vergleich mit der Theorie.** Nach H. BETHE³³ gilt für das innere Potential einer aus Atomen mit kugelsymmetrischer Elektronendichteverteilung $\varrho(r)$ bestehenden Substanz

$$\Phi_{\text{theor}} = \frac{e}{6\epsilon_0} \frac{\Theta}{V},$$

wobei e die Elektronenladung, $\epsilon_0 = 8,86 \cdot 10^{-14}$ As/V cm die elektrische Feldkonstante, V das von einem Atom eingenommene Volumen und

$$\Theta = 4\pi \int_0^{\infty} \varrho(r) r^4 dr$$

ist. Für Kohlenstoff ist aus Hartree-Funktionen von F. LENZ³⁴ Θ zu $16,6 a_H^2 = 4,64 \cdot 10^{-16}$ cm² berechnet worden. Für die anderen hier untersuchten Objektsubstanzen liegen keine Hartree-Funktionen vor. Man kann in diesem Fall aber nach einem Vorschlag von H. WYRWICH und F. LENZ³⁵ näherungsweise

$$\Theta \approx \left(\frac{6V}{\pi} \right)^{\frac{2}{3}}$$

setzen. Das Atomvolumen V kann man aus Dichte γ und Atomgewicht A der Objektsubstanz nach

$$V = \frac{A M_0}{\gamma}$$

berechnen, wobei $M_0 = 1,66 \cdot 10^{-24}$ g die kernphysikalische Masseneinheit ist. Von den Metallen Al, Cu, Ag, Au dürfen wir auf Grund von Elektronenbeugungsuntersuchungen annehmen, daß sie auch in Auf-

Tabelle 3. *Theoretisch berechnete Werte des inneren Potentials*

Material	A	γ (g/cm ³)	Φ_{theor} (V)
C	12	1	7
Al	27	2,70	18,2
Cu	63,5	8,96	20,4
Ag	108	10,5	18,1
Au	197	19,3	18,1

dampfschichten ebenso dicht gepackt sind wie im massiven Metall, d.h. für die Dichte γ die für das massive Material gültigen Werte einsetzen. Kohlenstoff dürfte dagegen in Aufdampfschichten lockerer gepackt sein als im Graphit- oder gar Diamantgitter, wofür ebenfalls die keine

³³ BETHE, H.: Ann. d. Physik **87**, 55 (1928).

³⁴ LENZ, F.: Z. Naturforsch. **9a**, 185 (1954).

³⁵ WYRWICH, H., u. F. LENZ: Z. Naturforsch. **13a**, 515 (1958).

scharfen Reflexe enthaltenden diffusen Elektronenbeugungsdiagramme sprechen. Setzen wir für die Dichte der Kohlenstoffschicht den Wert 1 g/cm^3 an, so erhalten wir mit Hilfe der obigen Beziehungen die Tabelle 3.

Ogleich die Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment recht unvollkommen ist, läßt sich doch qualitativ feststellen, daß die am lockersten gepackte Objektsubstanz (C) in Theorie und Experiment den kleinsten und die am dichtesten gepackte (Cu) den größten Wert für das innere Potential besitzt.

Herrn Professor Dr. G. MÖLLENSTEDT danke ich für die Anregung und Förderung dieser Arbeit sowie für sein ständiges Interesse. Herrn Dozent Dr. F. LENZ danke ich für die kritische Durchsicht des Manuskriptes. Von ihm stammt der letzte Abschnitt über den Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit der Theorie. Ferner danke ich der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die apparative Unterstützung.

Aus dem Institut für Angewandte Physik der Universität Tübingen

Elektronen-Zweistrahlintervenzen mit hohem Gangunterschied

Von

MAX KELLER

Mit 1 Figur im Text

(Eingegangen am 8. Mai 1961)

On a photograph of an electron interference pattern produced in an electrostatic biprism arrangement 2200 fringes could be counted. Though this number is still far below the theoretical limit following from the chromatic inhomogeneousness of the electron source, it exceeds the highest hitherto measured number of electron interference fringes by the factor of 7.

Elektronen-Zweistrahlintervenzen haben in der letzten Zeit für physikalische Grundversuche mit Elektronenwellen Bedeutung erlangt. Sie sind neben anderen Anwendungen auch für die experimentelle Bestimmung der Kohärenzlänge von Wellenzügen geeignet.

Eine theoretische Grenze für die Kohärenzlänge ist durch die Monochromasie der Wellenstrahlung gegeben. Bei einer Halbwertsbreite $d\lambda$ der spektralen Intensitätsverteilung und der Lage des Intensitätsmaximums bei λ_0 ist die in der Kohärenzlänge enthaltene Anzahl von Wellenlängen durch $z = \lambda_0/d\lambda$ gegeben.

Die Halbwertsbreite der Energieverteilung von Glühelctronen aus der Wolframkathode eines Elektronenmikroskops unter Berücksichtigung der anomalen Verbreiterung beträgt nach Messungen von DIETRICH¹ 1,4 eV bei 35 kV Strahlspannung und 80 μ A Strahlstrom. Zusammen mit einer angenommenen Welligkeit der Hochspannung von 0,6 V ergibt sich für die beschleunigten Elektronen eine wirksame Halbwertsbreite von 2 V. Weil λ zur Wurzel aus der Beschleunigungsspannung U_0 indirekt proportional ist, gilt $z = \lambda_0/\Delta\lambda = 2U_0/\Delta U$, also ist für $U_0 = 35$ kV und $\Delta U = 2$ V $z = 35\,000$.

Die größte bisher im Experiment beobachtete Anzahl von Interferenzstreifen liegt noch erheblich unter dieser Grenze.

Eine von MARTON, SIMPSON und SUDDETH^{2,3} verwendete Interferenzanordnung mit Amplitudenteilung eines Elektronenbündels an

¹ DIETRICH, W.: Z. Physik **152**, 306 (1958).

² MARTON, L., J.A. SIMPSON and J.A. SUDDETH: Phys. Rev. **90**, 410 (1953).

³ MARTON, L.: Science **118**, 470 (1953).

drei von den Elektronen durchstrahlten einkristallinen Cu-Folien ergab Interferenzstreifen-Systeme von maximal 154 kontrastarmen Streifen. Dies entspricht einer Mindestkohärenzlänge von $7,1 \text{ \AA}$ bei auf 66 kV beschleunigten Glühelctronen.

Die elektronenoptische Biprisma-Interferenzanordnung nach MÖLLENSTEDT und DÜKER^{4,5}, die nach dem Prinzip der Winkelteilung arbeitet, liefert dagegen lichtstarke und kontrastreiche Streifensysteme. Die photographischen Aufnahmen enthielten maximal 300 Interferenzstreifen, was einer Kohärenzlänge von $22,1 \text{ \AA}$ der auf 27 kV beschleunigten Glühelctronen entspricht.



Fig. 1. Biprisma-Elektroneninterferenzen. Ausschnitt mit 140 Streifen aus einem Interferenzfeld von 2200 Streifen

Durch Verbesserungen dieser Apparatur in bezug auf Präzision und Hochspannungsfestigkeit der verwendeten elektrostatischen Zylinderlinsen, Abschirmung des Strahlengangs gegen magnetische Störfelder und Vermeidung von mechanischen Erschütterungen ist es jetzt gelungen, die erreichte Zahl der Interferenzstreifen auf 2200 zu erhöhen. Damit ist eine Kohärenzlänge von 142 \AA der auf 35 kV beschleunigten Glühelctronen experimentell nachgewiesen.

Der Streifenabstand auf der Ilford Q 1-Photoplatte betrug $18,3 \mu$. Da eine das gesamte Interferenzfeld enthaltende Vergrößerung der Originalaufnahme bei einem mit unbewaffnetem Auge noch sichtbaren Linienabstand mindestens 22 cm lang sein würde, ist in Fig. 1 nur ein Ausschnitt mit etwa 140 Interferenzstreifen wiedergegeben.

Interferenzfelder mit vielen feinen Streifen erreicht man in der Biprisma-Apparatur durch eine starke Umlenkung der Strahlen im Biprisma. Die interferierenden Strahlen, die von der beleuchtenden Elektronenquelle ausgehen, schließen dabei einen relativ großen Winkel 2θ

⁴ MÖLLENSTEDT, G., u. H. DÜKER: Naturwissenschaften **42**, 41 (1954).

⁵ MÖLLENSTEDT, G., u. H. DÜKER: Z. Physik **145**, 377 (1956).

ein. Daher muß wegen der Kohärenzbedingung $b \sin \vartheta \ll \lambda/2$ die Breite b der verwendeten strichförmigen Quelle sehr gering sein. Es hat sich gezeigt, daß in der Praxis $b = 0,2 \lambda / \sin \vartheta$ genügt, um kontrastreiche Interferenzen zu erhalten. Im vorliegenden Falle betrug die Breite der Quelle etwa 35 \AA . Die mit der Quellenbreite proportional abnehmende Intensität in der Registrierebene stellt eine der Grenzen der geschilderten Methode dar. Es erscheint möglich, daß ein interferometrischer Biprisma-Strahlengang⁶ zum Nachweis der vollen Kohärenzlänge noch besser geeignet ist. Arbeiten dazu sind im Gange⁷.

Herrn Professor Dr. G. MÖLLENSTEDT danke ich für wertvolle Beratung. Der Deutschen Forschungsgemeinschaft habe ich für apparative Unterstützung zu danken.

⁶ JONES, D.: Colloques Internationaux Toulouse 1955.

⁷ MÖLLENSTEDT, G., u. W. BAYH: Naturwissenschaften **48**, 400 (1961).

Aus dem Institut für Technische Physik der Technischen Hochschule Darmstadt

Spezifische Wärmen von $\text{DyCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ und $\text{NdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ im Temperaturbereich zwischen 1,2 °K und 220 °K

Von

W. PFEFFER

Mit 5 Figuren im Text

(Eingegangen am 5. Juni 1961)

Die spezifischen Wärmen c^{Dy} und c^{Nd} von $\text{DyCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ und $\text{NdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ werden im Temperaturbereich zwischen 1,2 °K und 220 °K kalorimetrisch bestimmt. Die Differenzen $c^{\text{Dy}} - c^{\text{Gd}}$ und $c^{\text{Nd}} - c^{\text{Gd}}$ zwischen den gemessenen spezifischen Wärmen und der spezifischen Gitterwärme des zu beiden Salzen isomorphen $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ werden jeweils mit der aus der spektroskopisch gemessenen Kristallfeldaufspaltung berechneten spezifischen elektronischen Wärme $c_{\text{el}}^{\text{Dy}}$ bzw. $c_{\text{el}}^{\text{Nd}}$ verglichen. Dabei ergibt sich, daß zwei absorptionsspektroskopisch nicht mehr erfaßbare Grundtermkomponenten von $\text{NdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ in der Gegend von 135 cm^{-1} liegen, und daß die spezifischen Gitterwärmen von $\text{DyCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ und $\text{NdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ einander proportional sind und sich näherungsweise wie die reziproken Molekulargewichte dieser Salze verhalten. Für $T < 2,5\text{ °K}$ zeigt c^{Dy} einen Anstieg mit fallender Temperatur, der vermutlich auf Wechselwirkungen zwischen den Dy^{++} -Ionen und auf Hyperfeinstruktur zurückzuführen ist.

§ 1. Zweck der Messung

Die absorptionsspektroskopische Bestimmung höherer Kristallfeldkomponenten der Grundterme von Salzen Seltener Erden ist häufig nicht möglich, weil die Linienbreite bei den für eine ausreichende Besetzung dieser Komponenten nötigen relativ hohen Temperaturen zu groß ist. Deshalb wurde bereits früher versucht, höhere Grundtermkomponenten von $\text{HoCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ und $\text{ErCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ¹ kalorimetrisch aus dem Temperaturverlauf der spezifischen elektronischen Wärme zu bestimmen. Dabei ergab sich die Schwierigkeit, daß die spezifische elektronische Wärme nur bei etwa $T < 20\text{ °K}$ mit ausreichender Genauigkeit durch Differenzbildung zwischen der spezifischen Wärme der Substanz und der spezifischen Gitterwärme von $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ bestimmt werden kann, weil nur bei so tiefen Temperaturen die Differenz zwischen den spezifischen Gitterwärmen von Substanz und Vergleichssubstanz klein gegen die spezifische elektronische Wärme ist. Für die Bestimmung der

¹ PFEFFER, W.: Z. Physik **162**, 413 (1961).

Energien höherer Grundtermkomponenten ist aber gerade die Kenntnis der spezifischen elektronischen Wärme bei höheren Temperaturen nötig, da die spektroskopisch nicht mehr bestimmbar Grundtermkomponenten für $T < 20^\circ\text{K}$ nur unmerklich zur spezifischen elektronischen Wärme beitragen. Es ist daher notwendig, wenigstens eine qualitative Aussage über den Temperaturverlauf der Differenz zwischen den spezifischen Gitterwärmern der isomorphen Chloride zweier verschiedener Seltener Erden zu bekommen. Dabei interessiert besonders, ob dieser Temperaturverlauf eine monotone Funktion ist, oder ob er Maxima oder Minima aufweist. Im ersteren Fall ist dann wenigstens die Lage von Maximis in der Differenz zwischen der spezifischen Wärme eines Seltenen Erdchlorides und der spezifischen Gitterwärme von $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ für die Bestimmung höherer Grundtermkomponenten auswertbar.

Im folgenden wird deshalb zunächst die Messung der spezifischen Wärme c^{Dy} von $\text{DyCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ beschrieben, dessen Grundtermkomponenten sämtlich spektroskopisch bestimmt worden sind², und dessen spezifische elektronische Wärme $c_{\text{el}}^{\text{Dy}}$ daher gegeben ist³. Mit der früher bestimmten⁴ spezifischen Gitterwärme c_G^{Gd} des zu $\text{DyCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ isomorphen⁵ $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ wird die Differenz der spezifischen Gitterwärmern

$$c_G^{\text{Gd}} - c_G^{\text{Dy}} = c_G^{\text{Gd}} - c^{\text{Dy}} + c_{\text{el}}^{\text{Dy}} \quad (1)$$

berechnet. Dabei ergibt sich, daß für $T > 20^\circ\text{K}$ die Differenz $c_G^{\text{Gd}} - c_G^{\text{Dy}}$ proportional c_G^{Gd} ist. Es wird dann angenommen, daß diese Art Proportionalität für die Chloride aller Seltenen Erden gilt, die mit $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ isomorph sind. Unter dieser Annahme werden zwei höhere Grundtermkomponenten von $\text{NdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ermittelt⁵.

² DIEKE, G. H., and S. SINGH: J. Opt. Soc. Amer. **46**, 495 (1956) und GRAMBERG, G.: Z. Physik **159**, 125 (1960). Die Lagen der Grundtermkomponenten wurden bei $4,2^\circ\text{K}$, 58°K und 77°K gemessen. Ihre Temperaturabhängigkeit ist in diesem Temperaturbereich vernachlässigbar klein. Die sechs tiefsten Komponenten wurden in Absorption und in Fluoreszenz gemessen, die zwei höchsten Komponenten dagegen konnten nur in Fluoreszenz ermittelt werden.

³ Übergänge zwischen dem Grundterm und höheren Termen können bei $T < 300^\circ\text{K}$ keinen merklichen Beitrag zur spezifischen Wärme liefern, da nach R. J. ELLIOTT, B. R. JUDD und W. A. RUNCIMAN [Proc. Roy. Soc. Lond. A **240**, 509 (1957)] der Energieunterschied zwischen dem Grundterm und dem nächst höheren Term bei diesen Temperaturen groß gegen kT ist.

⁴ HELLWEGE, K. H., F. KÜCH, K. NIEMANN u. W. PFEFFER: Z. Physik **162**, 358 (1961).

⁵ Nach A. PABST, Amer. J. Sci. **22**, 426 (1931), sowie nach W. J. IWERONOWA, W. P. TARASSOWA, M. M. UMANSKI, Nachr. Akad. Wiss. UdSSR., physik. Ser. **15**, 164 (1951), und nach¹ sind $\text{NdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{SmCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{HoCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ und $\text{ErCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ isomorph. Daher ist anzunehmen, daß auch $\text{DyCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ und $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ isomorph sind, zumal sich ihre spezifischen Wärmen bei höheren Temperaturen nur geringfügig unterscheiden.

§ 2. Experimentelles und Meßergebnisse

Die spezifischen Wärmen c^{Dy} und c^{Nd} von $\text{DyCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ und $\text{NdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ wurden mit demselben adiabaten Kalorimeter in der gleichen

Tabelle 1. *Spezifische Wärme von $\text{DyCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$*

T [°K]	$c^{\text{Dy}} \left[\frac{\text{Wsek}}{\text{Mol} \cdot ^\circ\text{K}} \right]$	T [°K]	$c^{\text{Dy}} \left[\frac{\text{Wsek}}{\text{Mol} \cdot ^\circ\text{K}} \right]$	T [°K]	$c^{\text{Dy}} \left[\frac{\text{Wsek}}{\text{Mol} \cdot ^\circ\text{K}} \right]$
1,51	0,08	9,95	4,49	95,88	151,6
1,63	0,05	12,37	7,59	109,66	172,1
1,69	0,05	14,46	10,68	122,39	188,0
1,72	0,06	16,76	14,64	136,47	205,4
2,04	0,01	19,15	19,36	152,39	224,3
2,52	0,00	22,62	25,4	170,02	243,6
2,83	0,08	26,97	33,9	187,69	262,2
3,32	0,16	31,03	41,9	205,56	279,7
3,35	0,14	36,45	52,2	223,52	294,8
4,07	0,24	44,54	67,5	240,99	308,8
4,49	0,31	54,44	85,6	260,13	322,9
6,16	1,00	66,57	106,7		
8,06	2,46	80,96	129,6		

Weise gemessen, wie früher die spezifische Wärme von $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}^4$. Die Substanzen lagen als 2 bis 4 mm große Einkristalle vor, die aus Dy_2O_3 bzw. Nd_2O_3 (Lieferfirma Auer Remy, angegebene Reinheit 99,9%

Tabelle 2. *Spezifische Wärme von $\text{NdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$*

T [°K]	$c^{\text{Nd}} \left[\frac{\text{Wsek}}{\text{Mol} \cdot ^\circ\text{K}} \right]$	T [°K]	$c^{\text{Nd}} \left[\frac{\text{Wsek}}{\text{Mol} \cdot ^\circ\text{K}} \right]$	T [°K]	$c^{\text{Nd}} \left[\frac{\text{Wsek}}{\text{Mol} \cdot ^\circ\text{K}} \right]$
1,16	0,02	13,17	5,53	60,93	102,6
1,58	0,01	15,02	7,82	72,00	124,1
2,37	0,02	15,68	8,97	83,15	142,8
3,05	0,05	17,95	12,92	92,36	156,6
3,56	0,09	18,25	13,53	109,73	183,3
4,24	0,16	21,37	19,49	122,47	199,9
4,64	0,19	21,55	19,76	136,37	217,6
4,98	0,24	25,34	27,29	151,72	235,9
6,18	0,48	25,35	27,33	168,84	255,6
8,21	1,23	30,18	37,86	205,12	293,7
8,94	1,68	30,36	38,38	205,13	293,0
10,42	2,74	36,59	51,74	221,52	308,1
11,14	3,28	43,40	66,82	223,37	309,9
12,45	4,62	51,35	83,71		

bzw. 99,96%) in der unter ⁴ beschriebenen Weise hergestellt wurden. Bei $\text{DyCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ wurde ein Wasserüberschuß von 0,1⁰/₀₀, bei $\text{NdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ein Wasserüberschuß von 3,3⁰/₀₀ der Masse des Salzes festgestellt. Die dadurch bedingten Fehler in den gemessenen spezifischen Wärmen

konnten aus den früher ⁴ genannten Gründen nicht korrigiert werden.

Das Meßergebnis zeigen die Tabellen 1, 2 und Fig. 1. Die Meßfehler sind die gleichen wie bei ^{1, 4}.

§ 3. Auswertung und Diskussion der Meßergebnisse

1. $\text{DyCl}_3 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$. Von c^{Dy} wurde die spezifische Gitterwärme c_G^{Gd} von $\text{GdCl}_3 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ abgezogen, die früher für $T > 8^\circ \text{K}$ direkt gemessen,

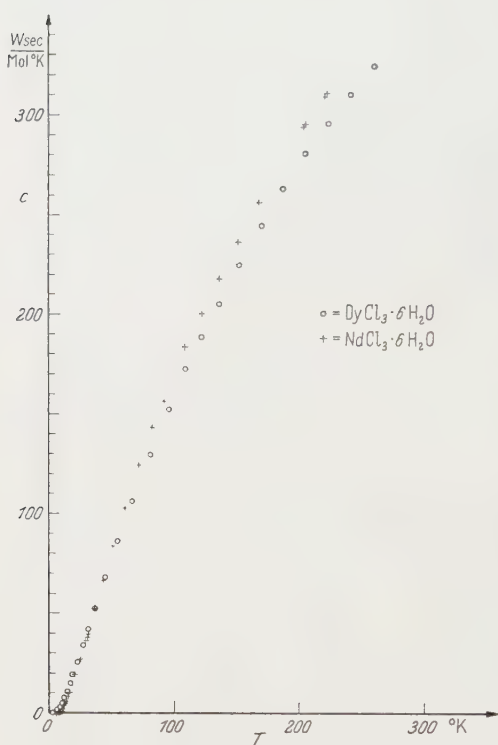


Fig. 1. Spezifische Wärmen von $\text{DyCl}_3 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ und $\text{NdCl}_3 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$

für $T < 8^\circ \text{K}$ proportional T^3 extrapoliert wurde⁴. $c^{\text{Dy}} - c_G^{\text{Gd}}$ ist in Fig. 2 als ausgezogene Kurve dargestellt. Die \circ sind Meßpunkte. Die Marken am oberen Rand geben den mittleren statistischen Fehler von $c^{\text{Dy}} - c_G^{\text{Gd}}$ an (vgl. ¹). Ferner wurde aus den spektroskopisch bestimmten Lagen 0 cm^{-1} ; $33,09 \text{ cm}^{-1}$; $62,86 \text{ cm}^{-1}$; $75,71 \text{ cm}^{-1}$; $91,93 \text{ cm}^{-1}$; $111,3 \text{ cm}^{-1}$; $152,4 \text{ cm}^{-1}$; $493,0 \text{ cm}^{-1}$ der acht Kramers-entarteten Kristallfeldkomponenten des Grundterms ${}^6H_{15/2}$ die spezifische elektronische Wärme $c_{\text{el}}^{\text{Dy}}$ berechnet³ und in Fig. 2 dargestellt (gestrichelte Kurve). Bei tiefen Temperaturen stimmen die gemessenen $c^{\text{Dy}} - c_G^{\text{Gd}}$ mit den berechneten $c_{\text{el}}^{\text{Dy}}$ gut überein. Bei höheren Temperaturen laufen jedoch die

beiden Kurven beträchtlich auseinander. Hieraus folgt, daß dort die Differenz $c_G^{\text{Gd}} - c_G^{\text{Dy}}$ der spezifischen Gitterwärmen von $\text{GdCl}_3 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ und $\text{DyCl}_3 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ nicht mehr klein gegen $c_{\text{el}}^{\text{Dy}}$ ist. Die \circ in Fig. 3 stellen $c_G^{\text{Gd}} - c_G^{\text{Dy}}$ als Differenz zwischen den gemessenen und den berechneten Werten in Fig. 2 dar. Vergleichsweise ist in Fig. 3 noch $0,0175 c_G^{\text{Gd}}$ als ausgezogene Kurve eingezeichnet. Vergleicht man die Abweichungen der \circ von der ausgezogenen Kurve in Fig. 3 mit dem in Fig. 2 angegebenen mittleren statistischen Fehler der Messung, so ergibt sich, daß für

$T > 20^\circ\text{K}$ im Rahmen der Meßgenauigkeit

$$c_G^{\text{Gd}} - c_G^{\text{Dy}} = 0,0175 \cdot c_G^{\text{Gd}} \quad (2)$$

gilt. Es ist also

$$c_G^{\text{Dy}} = (1 - 0,0175) c_G^{\text{Gd}}$$

d.h. die spezifischen Gitterwärmen der beiden isomorphen Salze sind einander proportional, und zwar ist die des schwereren Salzes etwa 1,75 %

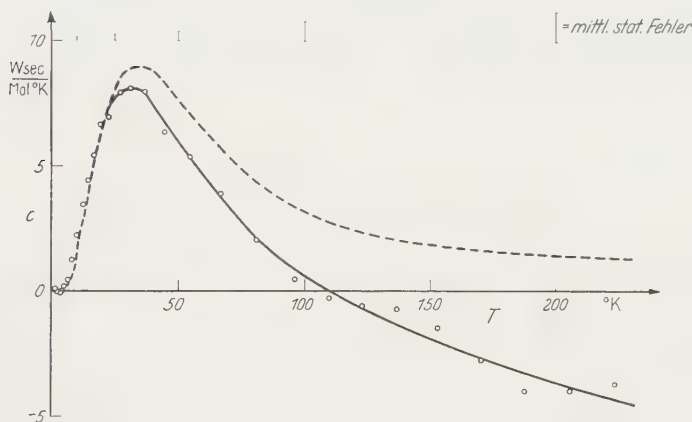


Fig. 2. — Differenz zwischen spezifischer Wärme von $\text{DyCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ und spezifischer Gitterwärme von $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$. Die \circ sind Meßpunkte. — Aus den spektroskopisch bestimmten Lagen sämtlicher Grundtermkomponenten berechnete spezifische elektronische Wärme von $\text{DyCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$

kleiner. Diese Proportionalität kann kaum zufällig sein und sollte innerhalb einer isomorphen Reihe eines Salzes der SE generell gelten (s. unten).

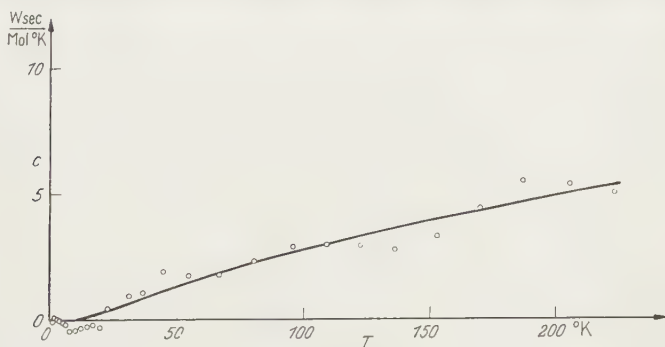


Fig. 3. \circ Differenz zwischen den spezifischen Gitterwärmen von $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ und $\text{DyCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$.
1,75% der spezifischen Gitterwärme von $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$

Wie man aus Tabelle 1 ferner ersieht, steigt c^{Dy} bei $T < 2,5^\circ\text{K}$ wieder an, und zwar ist dort näherungsweise

$$c_{\text{el}}^{\text{Dy}} = \frac{0,15}{T^2} \cdot \frac{\text{Wsek} \cdot ^\circ\text{K}}{\text{Mol}} \quad (3)$$

Dieser Anstieg wird vermutlich durch Wechselwirkungen zwischen den Dy^{+++} Ionen und durch Hyperfeinstruktur verursacht.

2. $NdCl_3 \cdot 6 H_2O$. Fig. 4 zeigt die Differenz $c_G^{Nd} - c_G^{Gd}$ zwischen der spezifischen Wärme von $NdCl_3 \cdot 6 H_2O$ und der spezifischen Gitterwärme von $GdCl_3 \cdot 6 H_2O$ als ausgezogene Kurve. Die \circ sind Meßpunkte. Der mittlere statistische Fehler ist der gleiche wie in Fig. 2.

Von den fünf Kramers-entarteten Kristallfeldkomponenten des Grundterms $^4I_{9/2}$ von $NdCl_3 \cdot 6 H_2O$ wurden spektroskopisch bisher nur drei gefunden^{6,7}. Ihre Lagen sind: $W_1 = 0 \text{ cm}^{-1}$, $W_2 = 61,5 \text{ cm}^{-1}$,

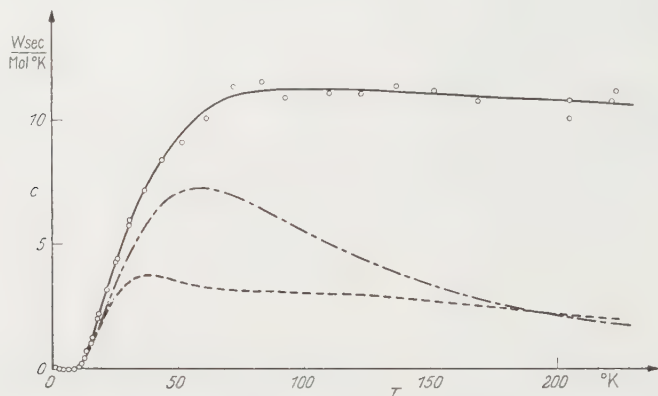


Fig. 4. ——— Differenz zwischen spezifischer Wärme von $NdCl_3 \cdot 6 H_2O$ und spezifischer Gitterwärme von $GdCl_3 \cdot 6 H_2O$. Die \circ sind Meßpunkte. — — — Aus den Lagen der spektroskopisch gefundenen Grundtermkomponenten berechneter Teil der spezifischen elektronischen Wärme von $NdCl_3 \cdot 6 H_2O$. — · — · — Spezifische elektronische Wärme von $NdCl_3 \cdot 6 H_2O$ unter Annahme zweier weiterer Komponenten bei 135 cm^{-1}

$W_3 = 250 \text{ cm}^{-1}$. Der von diesen drei Komponenten herrührende Anteil der spezifischen elektronischen Wärme c_{el}^{Nd} ist in Fig. 4 als gestrichelte Kurve dargestellt. Nimmt man zunächst an, daß die übrigen zwei Grundtermkomponenten so hoch liegen, daß sie für $T < 230 \text{ °K}$ keinen Beitrag mehr zu c_{el}^{Nd} liefern, so ist der Unterschied zwischen den gemessenen und den berechneten Werten in Fig. 4 allein auf die Differenz $c_G^{Nd} - c_G^{Gd}$ zwischen den spezifischen Gitterwärmern von $NdCl_3 \cdot 6 H_2O$ und $GdCl_3 \cdot 6 H_2O$ zurückzuführen³. $c_G^{Nd} - c_G^{Gd}$ hat dann den in Fig. 5 durch die \circ dargestellten Verlauf. Dieser läßt sich nicht wie beim $DyCl_3 \cdot 6 H_2O$ im Rahmen der Meßgenauigkeit als $\text{const } c_G^{Gd}$ darstellen, sondern er zeigt im Vergleich zu einer Kurve $\text{const } c_G^{Gd}$ einen ausgeprägten „Buckel“.

Setzt man nun voraus, daß dennoch $c_G^{Nd} - c_G^{Gd} = \text{const } c_G^{Gd}$ gelten soll, so folgt daraus, daß die willkürliche Annahme zweier sehr hoch

⁶ SPEDDING, F. H., and H. F. HAMLIN: J. Chem. Phys. **5**, 429 (1937).

⁷ EWALD, H.: Ann. Phys. **34**, 209 (1939).

liegender Grundtermkomponenten nicht richtig ist, daß vielmehr der Buckel im Verlauf der \circ in Fig. 5 durch den Beitrag dieser Komponenten zu $c_{\text{el}}^{\text{Nd}}$ entsteht. Zur Bestimmung der Lagen W_4, W_5 dieser Komponenten wurden W_4 und W_5 versuchsweise systematisch variiert, und aus W_1, \dots, W_5 wurde jeweils mit einer elektronischen Rechenmaschine $c_{\text{el}}^{\text{Nd}}$ berechnet. Die aus $c_{\text{el}}^{\text{Nd}}$ und den gemessenen $c^{\text{Nd}} - c_G^{\text{Gd}}$ berechneten c_G^{Nd} folgen dabei für $W_4 = W_5 = 135 \text{ cm}^{-1}$ am besten einer Kurve $\text{const } c_G^{\text{Gd}}$. Die strichpunktierte Kurve in Fig. 4 zeigt $c_{\text{el}}^{\text{Nd}}$ für $W_4 = W_5 = 135 \text{ cm}$, und die $+$ in Fig. 5 stellen $c_G^{\text{Nd}} - c_G^{\text{Gd}}$ für diesen Fall dar. Vergleicht man die Abweichungen der $+$ von der ausgezogenen Kurve

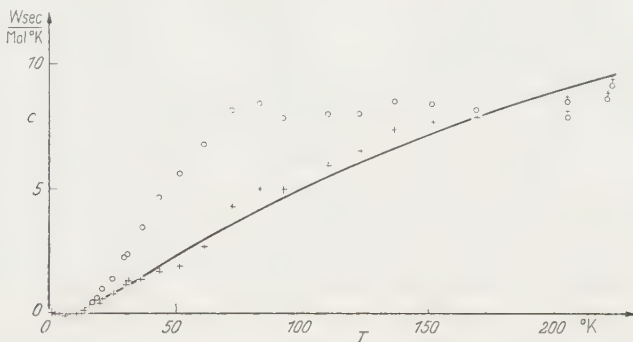


Fig. 5. \circ Differenz zwischen den spezifischen Gitterwärmen von $\text{NdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ und $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ bei Vernachlässigung der spektroskopisch nicht gefundenen Grundtermkomponenten. $+$ Differenz zwischen den spezifischen Gitterwärmen von $\text{NdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ und $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ unter Annahme der spektroskopisch nicht gefundenen Komponenten bei 135 cm^{-1} . — 3,2% der spezifischen Gitterwärme von $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$

$0,032 \cdot c_G^{\text{Gd}}$ in Fig. 5 mit den in Fig. 2 angegebenen mittleren statistischen Fehlern der Messung, so ergibt sich, daß im gesamten Temperaturbereich im Rahmen der Meßgenauigkeit

$$c_G^{\text{Nd}} - c_G^{\text{Gd}} = 0,032 c_G^{\text{Gd}} \quad (4)$$

für $W_4 = W_5 = 135 \text{ cm}^{-1}$ gilt. Es ist also unter dieser Annahme

$$c_G^{\text{Nd}} = (1 + 0,032) \cdot c_G^{\text{Gd}}.$$

Auch hier ist die spezifische Gitterwärme des schwereren Salzes wieder die kleinere. Vergleicht man das Verhältnis der spezifischen Gitterwärmen der untersuchten Salze

$$c_G^{\text{Nd}} : c_G^{\text{Gd}} : c_G^{\text{Dy}} = 1,032 : 1 : 0,983$$

mit dem Verhältnis der reziproken Molekulargewichte dieser Salze

$$\frac{1}{M^{\text{Nd}}} : \frac{1}{M^{\text{Gd}}} : \frac{1}{M^{\text{Dy}}} = 1,035 : 1 : 0,985$$

so findet man, daß im Rahmen der Meßgenauigkeit

$$c_G^{\text{Nd}} : c_G^{\text{Gd}} : c_G^{\text{Dy}} = \frac{1}{M^{\text{Nd}}} : \frac{1}{M^{\text{Gd}}} : \frac{1}{M^{\text{Dy}}} \quad (5)$$

gilt. Dieser einfache Zusammenhang scheint jedoch nicht für die spezifischen Gitterwärmen aller zu $\text{GdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ isomorphen Chloride der Seltenen Erden im Rahmen der Meßgenauigkeit zu gelten. Subtrahiert man nämlich die nach der erweiterten Gl. (5) berechnete spezifische Gitterwärme von $\text{ErCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ von der früher gemessenen¹ spezifischen Wärme c^{Er} , so erhält man für $c_{\text{el}}^{\text{Er}}$ etwas zu hohe Werte, die innerhalb der Meßgenauigkeit nicht mehr auf Übergänge zwischen den acht Kramers-entarteten Komponenten des Grundterms $^4I_{15,2}$ zurückgeführt werden können, gleichgültig, welche Energien man für die spektroskopisch nicht gefundenen fünf Kramers-Doublets annimmt.

Für $T < 2^\circ\text{K}$ zeigt c^{Nd} im Rahmen der Meßgenauigkeit keinen merklichen Anstieg bei fallender Temperatur. Da das Kalorimetergefäß bei der Messung von c^{Nd} die gleiche Menge Helium als Wärmeaustauschgas enthielt wie bei der Messung von c^{Dy} und c^{Er} (vgl. ¹), kann der dort gemessene $1/T^2$ -Verlauf von c_{el} bei $T < 2^\circ\text{K}$ nicht, wie in ¹ zunächst befürchtet wurde, auf Desorption von Helium zurückgeführt werden.

Ich danke Herrn Professor HELLWEGE für die Anregung und Förderung dieser Arbeit, sowie der Deutschen Forschungsgemeinschaft, die einen großen Teil der experimentellen Hilfsmittel zur Verfügung stellte.

Aus dem Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg

Das β -Spektrum des In^{114}

Von

H. DANIEL und PH. PANUSSI

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 14. Juni 1961)

The shape of the In^{114} β -spectrum has been measured with a magnetic lens spectrometer. The shape factor was found to be essentially allowed. A least square fit gave the following result for the deviation term b/W : $b = (5 \pm 2) \cdot 10^{-2} \text{ mc}^2$. The stated error is the standard deviation only. This result does not agree with the large deviation reported by LANGER et al. Additional information is given for the isomeric transition.

I. Ziel der Untersuchung

In neuerer Zeit sind eine Reihe von Untersuchungen mit dem Ziel ausgeführt worden, die Formen erlaubter β -Spektren möglichst genau zu messen. Die erste definitive Beobachtung einer Abweichung von der erlaubten Form gelang¹⁻⁴ bei P^{32} , dessen ft -Wert anomal hoch ist. Die Abweichung läßt sich quantitativ als Interferenz zwischen erlaubten und zweifach verbotenen Matrixelementen verstehen⁵. LANGER u. Mitarb.^{4,6,7} beobachteten jedoch auch Abweichungen bei anderen erlaubten Übergängen mit zum Teil niedrigem ft -Wert: In^{114} , Na^{22} und Zr^{89} . Dagegen hatte DANIEL² bei Na^{22} ein Spektrum erlaubter Form gefunden. Dieses Ergebnis wurde kürzlich von LEUTZ⁸ bestätigt. Neuerdings haben JENSEN u. Mitarb.⁹ bei In^{114} ebenfalls eine erlaubte

¹ PORTER, F. T., F. WAGNER jr. and M. S. FREEDMAN: Phys. Rev. **107**, 135 (1957).

² DANIEL, H.: Nuclear Phys. **8**, 191 (1958).

³ GRAHAM, R. L., J. S. GEIGER and T. A. EASTWOOD: Canad. J. Phys. **36**, 1084 (1958).

⁴ JOHNSON, O. E., R. G. JOHNSON and L. M. LANGER: Phys. Rev. **112**, 2004 (1958).

⁵ HENTON, G. B., and B. C. CARLSON: U.S. Atomic Energy Commission Report ISC-1006 (Iowa State University) 1957; — Bull. Amer. Phys. Soc. **2**, 358 (1957). — CARLSON, B. C., in: U.S. Atomic Energy Commission Report ISC-1048 (Iowa State University) 1958. — IBEN jr., I.: Phys. Rev. **109**, 2059 (1958). — EMAN, B., u. D. TADIĆ: Persönliche Mitteilung.

⁶ HAMILTON, J. H., L. M. LANGER and W. G. SMITH: Phys. Rev. **112**, 2010 (1958).

⁷ HAMILTON, J. H., L. M. LANGER and W. G. SMITH: Phys. Rev. **119**, 772 (1960).

⁸ LEUTZ, H.: Tagg Fachausschuß Kernphysik und kosmische Strahlung, Bad Nauheim, April 1961.

⁹ NICHOLS, R. T., R. E. McADAMS and E. N. JENSEN: Phys. Rev. **122**, 172 (1961).

Form gefunden. Alle oben aufgeführten Übergänge sind Gamow-Teller-Übergänge. Für Fermi-Wechselwirkung gibt es nur ein genauer untersuchtes Spektrum. DANIEL und SCHMIDT-ROHR¹⁰ fanden bei N^{13} , das zu 70% über Fermi- und zu 30% über Gamow-Teller-Wechselwirkung zerfällt, ein Spektrum erlaubter Form. Der β -Zerfall des N^{13} ist überlaubt.

Für die von LANGER u. Mitarb.^{4,6,7} berichteten Abweichungen wurden eine Reihe von Erklärungen vorgeschlagen, die alle nicht befriedigen; Fierz-Interferenz scheidet aus, weil die Langerschen Abweichungen sowohl bei Elektronen- als auch bei Positronenzerfall das gleiche Vorzeichen aufweisen. GOOD und HAMMER¹¹ schlagen eine Beimischung

von Neutrinos mit dem Spin $3/2$ vor, mit der sie die Langerschen Abweichungen erklären können, jedoch beim β -Zerfall des μ -Mesons in Schwierigkeiten geraten. GESHKENBEIN und RUDIK¹² setzen die Abweichungen von der erlaubten Spektralform in Beziehung zur Elektronenpolarisation; vgl. auch KUCHOWICZ¹³.

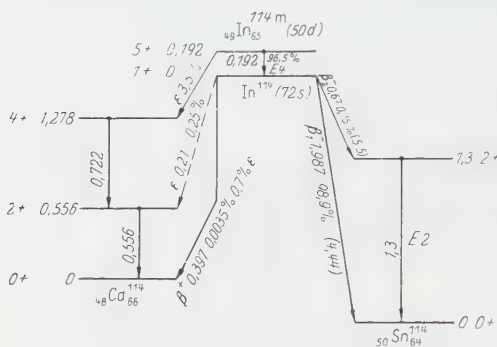


Fig. 1. Zerfallsschema von $In^{114m} - In^{114}$

Ziel der vorliegenden Untersuchung war es, festzustellen, ob die von LANGER u. Mitarb. angegebenen Abweichungen beim In^{114} überhaupt existieren. Dieses Isotop ist ein besonders guter Testfall der von LANGER beschriebenen Abweichungen, weil der ft -Wert niedrig ist. Fig. 1 zeigt das Zerfallsschema¹⁴.

II. Meßverfahren

Gemessen wurde mit dem Heidelberger Doppellinsenspektrometer¹⁵ nach bereits angegebenem Verfahren^{2,10}. Jedoch wurden kleinere Änderungen eingeführt. So wird die Kathode des Szintillationszählers jetzt mit einem Kühlaggregat auf $-45^\circ C$ gekühlt, um das thermische Rauschen des Vervielfachers zu verringern. Der Kristall ist eine Anthracenscheibe von 25 mm \varnothing und 1 mm Stärke. Er sitzt auf einem

¹⁰ DANIEL, H., and U. SCHMIDT-ROHR: Nuclear Phys. **7**, 516 (1958).

¹¹ GOOD jr., R. H., and C. L. HAMMER: Phys. Rev. **117**, 889 (1960).

¹² GESHKENBEIN, B. V., i A. P. RUDIK: Ž. eksp. teor. Fiz. **38**, 1894 (1960); engl. Übers. Soviet Phys. JETP **11**, 1361 (1960).

¹³ KUCHOWICZ, B.: Polish Acad. Sci. **7**, No. 94 (1959).

¹⁴ Nuclear Data Sheets, Nat. Acad. Sci. Washington, D. C., 1958ff.

¹⁵ DANIEL, H., u. W. BOTHE: Z. Naturforsch. **9a**, 402 (1954). — DANIEL, H.: Z. Naturforsch. **12a**, 194 (1957).

Lichtleiter mit geformtem Kopf, an den am anderen Ende ein Vervielfacher EMI 6097 A von $70 \mu\text{A/lumen}$ Primärempfindlichkeit angekoppelt ist. Zur Messung der Grenzenergie wird mit relativ hoher integraler Diskriminierung gearbeitet, um den Untergrund zu drücken, zur Messung des Kontinuums mit relativ niedriger Diskriminierung, um die Abscheidekorrektur klein zu halten. Das wird durch die Kühlung des Vervielfachers ermöglicht. Das Auflösungsvermögen des Szintillationsdetektors beträgt $\Delta E/E = 36\%$ bei 66 keV Elektronenenergie und $\Delta E/E = 17\%$ bei 280 keV Elektronenenergie. Die Meßzeit wird durch einen Quarzoszillator bestimmt.

In^{114} , im Gleichgewicht mit $\text{In}^{114\text{m}}$, wurde durch vierwöchige Bestrahlung von metallischem angereichertem In^{113} im Reaktor in Saclay bei $1,9 \cdot 10^{13} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ hergestellt. Das In^{113} , angereichert auf 50 %, war aus Harwell bezogen worden. Die Aktivität wurde als Metall auf die Trägerfolie ($0,23 \text{ mg/cm}^2 \text{ Al}$) in einer Schichtdicke von einigen $\mu\text{g/cm}^2$ im Vakuum aufgedampft. Bei den verwendeten Quellen- und Unterlagendicken ist keine meßbare Verfälschung des Spektrums zu befürchten^{10,16}. Die Messung wurde nach einem Zeitraum von 52 Tagen wiederholt, um eventuelle kürzer- oder längerlebige Verunreinigungen zu erkennen. Es wurden keine Verunreinigungen festgestellt.

Vor der Analyse wurden an den gemessenen Spektren von In^{114} eine Auflöse- und eine Abschnidekorrektur angebracht. Außerdem war auf die schwachen weichen Teilspektren zu korrigieren. Alle Korrekturen waren klein und ohne merklichen Einfluß auf den Formfaktor.

Die Fermi-Funktion wurde den Tabellen von DJELEPOV und SIRANOWA¹⁷ entnommen. In diesen Tabellen ist die endliche Ausdehnung des Kerns bereits berücksichtigt ($L_0 \equiv 1$), ebenso die Abschirmung.

Für die Analyse der Daten wurde der Formfaktor

$$Ff = \frac{N(W)}{F(Z, W) p W (W_0 - W)^2} \quad (1)$$

als Funktion der Elektronenenergie W aufgetragen; $N(W)$ ist die gemessene Zählrate pro Energieintervall, $F(Z, W)$ ist die Fermi-Funktion, p ist der Elektronenimpuls und W_0 ist die Grenzenergie des β -Spektrums. Bei erlaubter Form wird der Formfaktor durch eine horizontale Gerade dargestellt. Von besonderer Bedeutung ist offenbar die genaue Kenntnis der Grenzenergie W_0 . Analysiert wurden die Meßdaten mit dem Ansatz

$$Ff = A \left(1 + \frac{b}{W} \right). \quad (2)$$

Die Konstanten A und b wurden dabei durch Ausgleichsrechnung den Meßpunkten angepaßt.

¹⁶ FEHRENTZ, D., and H. DANIEL: Nucl. Instrum. **10**, 185 (1961).

¹⁷ DJELEPOV, B. S., u. L. N. SIRANOWA: Der Einfluß des atomaren elektrischen Feldes auf den β -Zerfall. Moskau: Akad. Nauk SSSR. 1956.

III. Ergebnisse und Diskussion

Fig. 2 zeigt eine Messung der beiden Konversionslinien des $\text{In}^{114\text{m}}$. Fig. 3 zeigt eine Grenzenergiebestimmung beim In^{114} . Fig. 4 zeigt den bei

In^{114} gemessenen Formfaktor. In dieser Figur sind die Resultate von drei einzelnen Formfaktorbestimmungen zusammengefaßt. Die Resultate der Messungen sind in der Tabelle enthalten.

Die den Meßpunkten angepaßte Kurve Fig. 4 unterscheidet sich vom Mittelwert innerhalb des untersuchten Bereichs um höchstens 1,5 %. Die geringe Abweichung von Null für b (s. Tabelle) ist wohl ohne Bedeutung. Einestails ist sie statistisch ohne große Bedeutung, da sie kleiner als

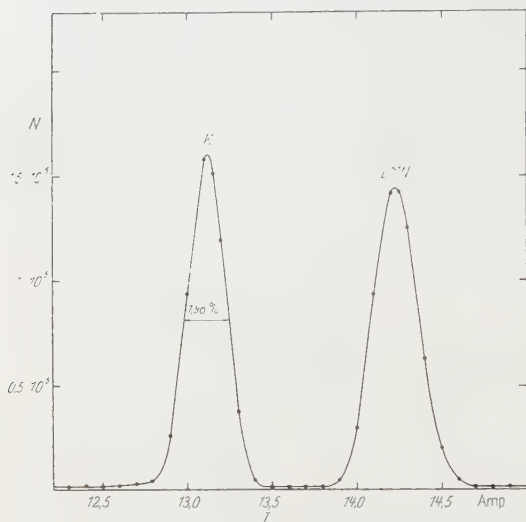


Fig. 2. Konversionslinien des isomeren Übergangs. Aufgetragen ist die Zählrate als Funktion des Spulenstroms

der dreifache mittlere Fehler ist, zum anderen ist es zweifelhaft, ob beispielsweise die Fermi-Funktion genau genug bekannt ist, um einer Ab-

weichung dieser Größe Gewicht zuzumessen. Außerdem besteht eine gewisse Unsicherheit in der Intensität der weichen Komponenten im β -Spektrum. Abweichungen von der Größenordnung des Bestwertes (Tabelle) können aber auch echte physikalische Gründe haben, etwa Interferenz mit zweifach verbotenem Matrixelement oder Gell-Mann-Terme¹⁸.

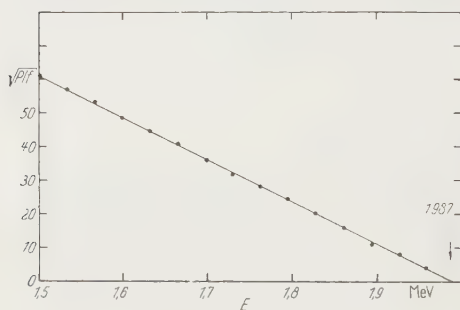


Fig. 3. Grenzenergiebestimmung beim In^{114}

In dieser Arbeit wurde ein Spektrum praktisch erlaubter Form gefunden. Das steht im Widerspruch zu dem großen Wert der Konstante b Gl. (2), den LANGER u. Mitarb. fanden: $b = 0,25 \text{ mc}^2$. Es befindet sich aber in guter Übereinstimmung mit dem von JENSEN u.

¹⁸ GELL-MANN, M.: Phys. Rev. **111**, 362 (1958).

Mitarb.⁹ erhaltenen Ergebnis. Ebenso ist es im Einklang mit dem früheren Heidelberger Resultat² an Na^{22} .

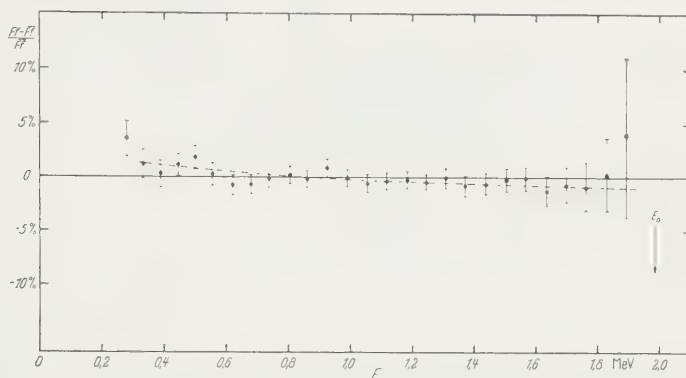


Fig. 4. Formfaktor des In^{114} - β -Spektrums (Abweichung vom gewichteten Mittel). Ausgezogene Gerade: Formfaktor für erlaubtes Spektrum. Gestrichelte Linie: Nach Gl. (2) durch Ausgleichsrechnung angepaßte Kurve. Die eingezeichneten mittleren Fehler sind nur aus der Zählstatistik errechnet

Die in dieser Arbeit gemessenen Werte für die Grenzenergie von In^{114} sowie für das K/LMN -Verhältnis von $\text{In}^{114\text{m}}$ befinden sich in guter bis

Tabelle. *Ergebnisse dieser Arbeit*

Isomerer Übergang		β -Kontinuum	
K/LMN (gemessen)	K/LMN (theoretisch)	Grenzenergie	Koeffizient b Gl. (2)
$1,00 \pm 0,02^a$	$0,8^b$	$1,987 \pm 0,002 \text{ MeV}^a$	$(5 \pm 2) \cdot 10^{-2} \text{ mc}^2^c$

a Geschätzter mittlerer Fehler.

b Für $E4$ -Strahlung errechnet aus den neueren Tabellen von ROSE¹⁹ mit dem Wert von KELMAN et al.²⁰ für N/M .

c Mittlerer Fehler gemäß Ausgleichsrechnung (unter Einschluß des Fehlers der Grenzenergiebestimmung).

befriedigender Übereinstimmung mit der Mehrzahl der früheren Bestimmungen¹⁴.

Herrn Professor W. GENTNER danken wir herzlich für sein förderndes Interesse. Herrn C. ENGLER für die Durchführung der Ausgleichsrechnung.

¹⁹ ROSE, M.E.: Internal Conversion Coefficients. Amsterdam: North-Holland Publishing Company 1958.

²⁰ KELMAN, V.M., R.I. METSKHVARISHVILI, V.A. ROMANOV, L.I. RUSINOV i K.A. KONOPLEV: Dokl. Akad. Nauk SSSR. **107**, 394 (1956); engl. Übers. Soviet Phys. Dokl. **1**, 189 (1956).

Aus dem I. Physikalischen Institut der Universität München

Über die Vergrößerung der meridionalen magnetooptischen Kerr-Drehung durch Aufdampfschichten *

Von

W. DRECHSEL

Mit 11 Figuren im Text

(Eingegangen am 8. Mai 1961)

Es werden Gleichungen hergeleitet, die die Wirkung von dielektrischen Aufdampfschichten auf die Größe der resultierenden Kerr-Drehung bei meridionaler Magnetisierung beschreiben. An zwei Spezialfällen werden sie genauer diskutiert. Veränderter Parameter ist dabei die Schichtdicke. Die Meßergebnisse erlauben den Schluß, daß die theoretischen Überlegungen den tatsächlichen Verhältnissen qualitativ grundsätzlich gerecht werden.

1. Einleitung

In mehreren Arbeiten ist gezeigt worden, daß durch dielektrische Aufdampfschichten bei polarer Magnetisierung der Probe die magneto-optische Kerr-Drehung^{1–7} und gleichzeitig der Kontrast zwischen verschiedenen magnetisierten Bereichen vergrößert werden kann^{5–7}. Das gleiche ist möglich bei meridionaler Magnetisierung der Probe^{8,9,10}.

In der vorliegenden Arbeit werden zunächst die allgemeinen Gleichungen hergeleitet, die die Wirkung der Aufdampfschicht auf die Größe der Kerr-Drehung im Falle meridionaler Magnetisierung der Probe und schrägen Lichteinfalls beschreiben. An zwei Spezialfällen, bei denen diese Gleichungen einfache Formen annehmen, werden sie genauer diskutiert. Veränderter Parameter ist dabei die Schichtdicke. Die in der Diplomarbeit des Verfassers⁹ angegebenen Versuche konnten noch nicht als hinreichende Bestätigung der theoretischen Überlegungen

* Aus der Dissertation des Verfassers. Univ. München 1961.

¹ NOSKOV, M.M.: C. R. Acad. Sci. URSS. **31**, Nr. 2, 111 (1941).

² NOSKOV, M.M.: C. R. Acad. Sci. URSS. **53**, Nr. 5, 413 (1946).

³ NOSKOV, M.M.: Z. exp. u. theor. Phys. (russ.) **17**, Nr. 11, 964 (1947).

⁴ NOSKOV, M.M., u. A.W. SOKOLOV: Z. exp. u. theor. Phys. (russ.) **17**, Nr. 11, 969 (1947).

⁵ HEINRICH, W.: Diss. Univ. München 1956.

⁶ HEINRICH, W.: Sitzgsber. bayer. Akad. Wiss., Math.-naturw. Kl. **1956**, 133.

⁷ KRANZ, J.: Naturwissenschaften **43**, 370 (1956).

⁸ KRANZ, J., u. W. DRECHSEL: Z. Physik **150**, 632 (1958).

⁹ DRECHSEL, W.: Dipl.-Arbeit Univ. München 1958.

¹⁰ KRANZ, J., u. A. SCHAUER: Demn. in Optik.

angesehen werden; die neuen Meßergebnisse erlauben den Schluß, daß die theoretischen Überlegungen den tatsächlichen Verhältnissen qualitativ grundsätzlich gerecht werden.

2. Theorie

2.1. Allgemeiner Fall

Die Wirkung der dielektrischen Aufdampfschicht auf die Größe der magnetooptischen Kerr-Drehung beruht auf ihrem Brechungsindex und auf Interferenz. Der Einfluß des Brechungsindex des an das Ferromagnetikum grenzenden Mediums wird bereits von W. VOIGT¹¹ erwähnt. Die Interferenzwirkung der Schicht wird in den zitierten Arbeiten ausführlich beschrieben.

Zu der in der Arbeit von J. KRANZ und W. DRECHSEL angegebenen Gl. (2)⁸, die das Verhältnis der Intensitäten der reflektierten Kerr-Schwingung und der ankommenden Normalschwingung angibt, gelangt man folgendermaßen:

Es seien:

r_1, r_2, r'_1, r'_2 = Intensitätsreflexionskoeffizienten an den Grenzschichten Luft/Schicht bzw. Schicht/Ferromagnetikum für senkrecht bzw. parallel zur Einfallsebene polarisiertes Licht.

f_ϵ = definiert durch $f_\epsilon = r_2 \cdot \frac{K \tilde{\alpha}_\beta}{N \tilde{\alpha}_\beta}$.

Diese Größe kann mit bekanntem r_2 aus den Grundgleichungen des meridionalen Kerr-Effekts nach W. VOIGT berechnet werden¹².

I_0 = Die auf die Probe fallende Gesamtintensität.

N bzw. K = Intensitäten der Normal- bzw. Kerr-Schwingung. (Mit Indices: Intensitäten der Teilstrahlen.)

S/Fe bzw. S/Fe' = Phasensprünge an der Grenzfläche Schicht/Ferromagnetikum für senkrecht bzw. parallel zur Einfallsebene polarisiertes Licht.

S = Phasenänderung bei zweimaligem Durchgang durch die Schicht.

D = $[I_0(1 - r_1)f_\epsilon(1 - r'_1)]^{\frac{1}{2}}$.

ψ' = $S + S/Fe' - \pi$.

¹¹ VOIGT, W.: In GRÄTZ, Handbuch der Elektrizität und des Magnetismus, Bd. IV, S. 675 u. 708. Dort Hinweis auf: L. R. INGERSOLL, Phil. Mag. (6) **18**, 95f. (1909).

¹² VOIGT, W.: In GRÄTZ, Handbuch der Elektrizität und des Magnetismus, Bd. IV, S. 704.

$$\begin{aligned}\psi &= S + S/Fe. \\ R &= (r_1 r_2)^{\frac{1}{2}}. \\ R' &= (r'_1 r'_2)^{\frac{1}{2}}.\end{aligned}$$

Für die Intensitäten der Teilstrahlen des 1K -Systems erhält man dann

$$\begin{aligned}^1K_{\tilde{1}} &= I_0(1 - r_1) f_e(1 - r'_1) = N_{0\alpha} \cdot f_e(1 - r'_1) \\ ^1K_{\tilde{2}} &= I_0(1 - r_1) f_e(1 - r'_1) r'_1 r'_2 \\ ^1K_{\tilde{3}} &= I_0(1 - r_1) f_e(1 - r'_1) (r'_1 r'_2)^2 \\ &\vdots \\ ^1K_{\tilde{\nu}} &= I_0(1 - r_1) f_e(1 - r'_1) (r'_1 r'_2)^{\nu-1}; \quad \nu \geq 1,\end{aligned}$$

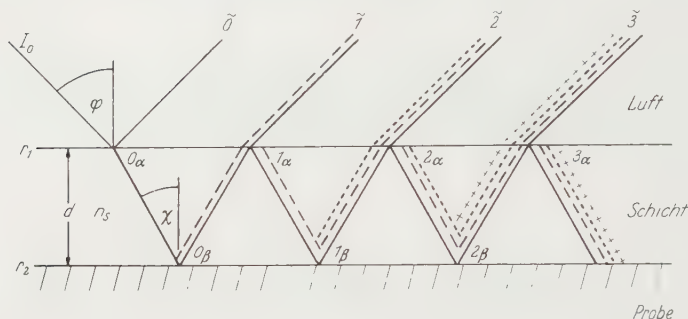


Fig. 1. --- Syst. 1K ; - - - - - Syst. 2K ; +++ Syst. 3K ; ——— Normalschwingung

für die Intensitäten der Teilstrahlen des 2K -Systems

$$\begin{aligned}^2K_{\tilde{2}} &= I_0(1 - r_1) r_1 r_2 f_e(1 - r'_1) = N_{1\alpha} \cdot f_e(1 - r'_1) \\ ^2K_{\tilde{3}} &= I_0(1 - r_1) r_1 r_2 f_e(1 - r'_1) r'_1 r'_2 \\ &\vdots \\ ^2K_{\tilde{\nu}} &= I_0(1 - r_1) r_1 r_2 \cdot f_e(1 - r'_1) (r'_1 r'_2)^{\nu-2}; \quad \nu \geq 2,\end{aligned}$$

für den Teilstrahl

$$^{\mu}K_{\tilde{\nu}} = I_0(1 - r_1) (r_1 r_2)^{\mu-1} \cdot f_e(1 - r'_1) (r'_1 r'_2)^{(\nu-\mu)}; \quad \nu \geq \mu.$$

Beim Übergang zu den komplexen Amplituden $^x\mathfrak{R}_y$ werden alle Phasen auf den Teilstrahl $^1\mathfrak{R}_{\tilde{1}}$ bezogen.

Dann wird im System $^1\mathfrak{R}$

$$\begin{aligned}^1\mathfrak{R}_{\tilde{1}} &= D \\ ^1\mathfrak{R}_{\tilde{2}} &= D R' e^{+i\psi'} \\ ^1\mathfrak{R}_{\tilde{3}} &= D R'^2 e^{i2\psi'} \\ &\vdots \\ ^1\mathfrak{R}_{\tilde{\nu}} &= D R'^{(\nu-1)} e^{i(\nu-1)\psi'} = D (R' e^{i\psi'})^{\nu-1}; \quad \nu \geq 1.\end{aligned}$$

Als Summe des ${}^1\mathfrak{R}$ -Systems ergibt sich:

$$\frac{D}{1 - R' e^{i\psi'}}$$

Im System ${}^2\mathfrak{R}$ analog für die Teilstrahlen

$$\begin{aligned} {}^2\mathfrak{R}_2 &= D R e^{i\psi} \\ {}^2\mathfrak{R}_3 &= D R e^{i\psi} R' e^{i\psi'} \\ &\vdots \\ {}^2\mathfrak{R}_\nu &= D R e^{i\psi} (R' e^{i\psi'})^{(\nu-2)}; \quad \nu \geq 2 \end{aligned}$$

und für die Summe

$$\frac{D R e^{i\psi}}{1 - R' e^{i\psi'}}$$

Im System ${}^\mu\mathfrak{R}$ wird dann

$${}^\mu\mathfrak{R}_\nu = D (R e^{i\psi})^{(\mu-1)} (R' e^{i\psi'})^{(\nu-\mu)} \quad \nu \geq \mu.$$

Durch Summation über alle Systeme erhält man die Reihe:

$$\frac{D}{1 - R' e^{i\psi'}} \cdot \sum_{\mu=1}^{\infty} (R e^{i\psi})^{(\mu-1)}.$$

Die Summe dieser Reihe ist:

$$\mathfrak{R} = \frac{D}{(1 - R' e^{i\psi'}) (1 - R e^{i\psi})}.$$

Für das Verhältnis der Intensitäten von reflektierter Kerr-Schwingung und einfallender Intensität ergibt sich dann:

$$\frac{K}{I_0} = \frac{f_e (1 - r_1') (1 - r_1)}{1 - 2A + 4B - 2C + E}, \quad (1)$$

wobei:

$$\begin{aligned} A &= R' \cos \psi' + R \cos \psi & B &= R' R \cos \psi' \cos \psi \\ C &= R' R^2 \cos \psi' + R R'^2 \cos \psi & E &= R'^2 + R^2 - R'^2 R^2. \end{aligned}$$

Dies ist Gl. (2) der Arbeit KRANZ-DRECHSEL.

Für den Phasenwinkel γ_K zwischen dem reflektierten Teilstrahl ${}^1\mathfrak{R}_1$ und \mathfrak{R} ergibt sich:

$$\operatorname{tg} \gamma_K = \frac{\mathfrak{R}_{\text{imag}}}{\mathfrak{R}_{\text{real}}} = \frac{R' \sin \psi' + R \sin \psi - R R' \sin (\psi' + \psi)}{1 - R' \cos \psi' - R \cos \psi + R R' \cos \psi \cos \psi'}. \quad (2)$$

Der Aufbau der beiden Gleichungen entspricht dem der entsprechenden Gleichungen für senkrechten Lichteinfall auf die Probe nach W. HEINRICH⁶. Gl. (1) und (2) gehen in letztere über, wenn man gestrichene und ungestrichene Größen gleichsetzt.

Mit der Airyschen Gleichung für das Verhältnis von

$$\frac{N}{I_0} = 1 - \frac{(1-r_1)(1-r_2)}{1+r_1r_2+2\sqrt{r_1r_2}\cos\psi_0}, \quad (\text{I})$$

wobei $\psi_0 = \pi - S + S/F e$ und unter Berücksichtigung der Phasendifferenz γ_N zwischen dem Teilstrahl \mathfrak{R}_1 und der Gesamtamplitude \mathfrak{R} der reflektierten Normalschwingung, s. Fig. 2, wobei

$$\gamma_N = \gamma_{0N} - \psi_0$$

$$\operatorname{tg} \gamma_{0N} = \frac{(1-r_1)\sqrt{r_1r_2}\sin\psi_0}{r_1r_2 + \sqrt{r_1r_2}\cos\psi_0 \cdot (1+r_1) + r_1} \quad (\text{II})$$

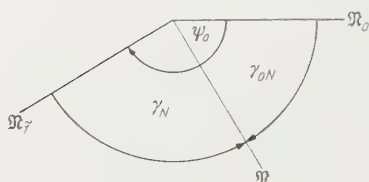


Fig. 2

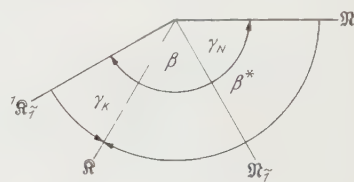


Fig. 3

erhält man für die resultierende doppelte Kerr-Drehung⁶:

$$\sigma_{\text{I-II}} = \operatorname{arc} \operatorname{tg} (2 \cdot \sqrt{K/N} \cdot \cos \beta^*), \quad (3)$$

wobei

$$\beta^* = \beta - \gamma_N + \gamma_K. \quad (4) \text{ s. Fig. 3}$$

β ist der Phasenwinkel der Kerr-Komponente an der Grenzfläche Schicht—Probe. Er kann aus den Gleichungen von W. VOIGT¹² berechnet werden.

2.2. Diskussion von Spezialfällen der Theorie

1. Fall: In dem im vorangehenden abgeleiteten allgemeinen Fall wird der Einfallswinkel der senkrecht zur Einfallsebene polarisierten Normalschwingung gleich dem Polarisationswinkel gesetzt: $\operatorname{tg} \varphi_P = n_S$. Für diesen Spezialfall gilt: $r'_1 = 0$ und $R' = 0$. s. Fig. 4

Damit wird Gl. (1) reduziert zu

$$\frac{K}{I_0} = \frac{f_e(1-r_1)}{1-2R\cos\psi+R^2}. \quad (5a)$$

Gl. (2) wird zu

$$\operatorname{tg} \gamma_K = \frac{R \sin \psi}{1 - R \cos \psi}. \quad (6a)$$

2. Fall: Gl. (1) ist, abgesehen von f_e , symmetrisch in den gestrichenen und ungestrichenen Größen, gilt also auch für den Fall, daß die einfallende Intensität parallel zur Einfallsebene polarisiert ist.

Wird für diesen Fall ebenfalls $\varphi = \varphi_P$ gewählt, vereinfachen sich die Verhältnisse in der in Fig. 5 dargestellten Weise. Es gilt dann ebenfalls: $r'_1 = 0$ und $R' = 0$.

Es entsteht nur *ein* System interferierender Kerr-Strahlen.

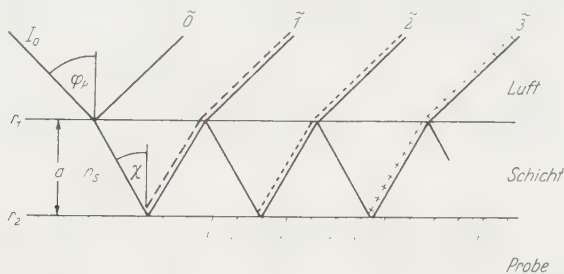


Fig. 4. --- Kerr-Strahl \mathfrak{K}_1 ; Kerr-Strahl \mathfrak{K}_2 ; +++ Kerr-Strahl \mathfrak{K}_3 ; — Normalerschwingung

γ_N , die Phasendifferenz zwischen dem ersten Teilstrahl \mathfrak{K}_1 der Normalschwingung und der aufsummierten gesamten austretenden Normalschwingung \mathfrak{N} wird 0, da \mathfrak{K}_1 und \mathfrak{N} identisch sind.

Wir erhalten also auch hier:

$$\frac{K}{I_0} = \frac{f'_e(1 - r_1)}{1 - 2R \cos \psi + R^2}. \quad (5b)$$

f'_e wird berechnet aus der Voigtschen Gleichung für den Fall, daß das auf die Probe fallende Licht parallel zur Einfallsebene polarisiert ist.

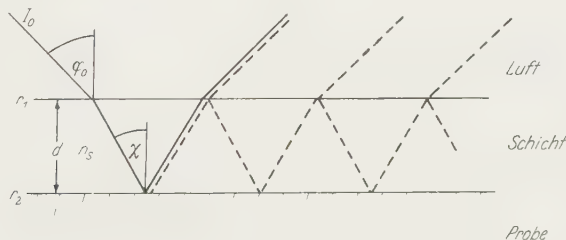


Fig. 5. --- Kerr-System; — Normalerschwingung

An Stelle von Gl. (2) ergibt sich:

$$\operatorname{tg} \gamma_K = \frac{R \sin \psi}{1 - R \cos \psi}. \quad (6b)$$

2.3. Absorption in der Schicht

Bei der Deutung der später angeführten experimentellen Ergebnisse wird auch die Möglichkeit in Betracht gezogen, daß die auf die Probe aufgedampfte ZnS-Interferenzschicht nicht absorptionsfrei ist. Eine

Absorption ist für die Normalschwingung und für die zuletzt angeführten Spezialfälle theoretisch einfach zu berücksichtigen, wenn bei der Ableitung der Amplitudengleichung ein Faktor der Form $e^{-\delta/2}$ für jede Amplitude nach einem Schichtdurchgang hinzugefügt wird. Es gelte für die Absorption der Intensität in der Schicht:

$$I = I_0 \cdot e^{-A \cdot d} \quad (d = \text{Dicke der Interferenzschicht}).$$

Dann erhält man mit $\frac{A \cdot d}{\cos \chi} = \delta$ für die Normalschwingung an Stelle von Gl. (I) S. 312:

$$\frac{N}{I_0} = 1 - \frac{(1 - r_1)(1 - r_2 e^{-2\delta})}{1 + 2R e^{-\delta} \cos \psi_0 + R^2 e^{-2\delta}}. \quad (\text{Ia})$$

Für γ_{0N} ergibt sich

$$\text{tg } \gamma_{0N} = \frac{(1 - r_1) R e^{-\delta} \sin \psi_0}{r_1 r_2 e^{-2\delta} + (1 + r_1) R e^{-\delta} \cos \psi_0 + r_1}. \quad (\text{IIa})$$

Gl. (5 a, b) wird zu

$$\frac{K}{I_0} = \frac{f_e^{(1)}(1 - r_1) e^{-2\delta}}{1 - 2R e^{-\delta} \cos \psi + R^2 e^{-2\delta}} \quad (5c)$$

und für γ_K an Stelle von (6a, b)

$$\text{tg } \gamma_K = \frac{R e^{-\delta} \sin \psi}{1 - R e^{-\delta} \cos \psi}. \quad (6c)$$

2.4. Bedeutung der Spezialfälle

Die Bedeutung dieser Spezialfälle liegt zunächst in der Übersichtlichkeit und Einfachheit der Gleichungen und der Interferenzmechanismen. Eine experimentelle Nachprüfung der Theorie bei diesen Spezialfällen erscheint daher sinnvoll, z.B. dadurch, daß man die Abhängigkeit der Kerr-Drehungen von der Schichtdicke verfolgt. Besonderes Interesse verdient der durch Fig. 5 skizzierte Fall, weil dort nur die Kerr-Schwingung interferiert. Die komplexe Verknüpfung beider Interferenzmechanismen und die gleichzeitige Abhängigkeit beider von der Schichtdicke ist hier aufgehoben, denn die Intensität der reflektierten Normalschwingung ist unabhängig von der Schichtdicke, weil sie überhaupt nicht interferiert, die Kerr-Schwingung erfährt eine einfache Zweiflächeninterferenz. Man könnte also hier die Interferenz der Kerr-Schwingung allein untersuchen.

Der in Fig. 5 verdeutlichte Fall, *Normalschwingung parallel zur Einfallsebene polarisiert*, bietet nun folgendes:

1. Für alle Schichtdicken ist $N = \text{const} = r'_2 = 29\% I$. Wenn ein Streulichtanteil existiert, ist er vermutlich relativ zu N kleiner als in

dem Fall, wo die reflektierte Normalschwingung N selbst nur wenige % von I_0 beträgt.

2. Nur die Kerr-Schwingung interferiert in Abhängigkeit von der Schichtdicke.

Dampft man eine keilförmige Interferenzschicht auf eine Probe, so ist die Änderung der Kerr-Drehung längs des Schichtkeils für diesen Fall nur durch die Interferenz der Kerr-Schwingung und durch ihre Phasenlage zur nichtinterferierenden Normalschwingung bedingt.

Für den Fall: *Normalschwingung senkrecht zur Einfallsebene polarisiert*, ergibt die Theorie einen Verlauf von σ_{I-II} , der sich zur Prüfung der Theorie vielleicht noch besser eignet, da er in der Umgebung des Minimums für die reflektierte Normalintensität N einen charakteristischen konstanten Verlauf, Vorzeichenwechsel, Maximum und flachen Auslauf gegen den Wert $\sigma_{I-II} = 0$ der doppelten Kerr-Drehung besitzt.

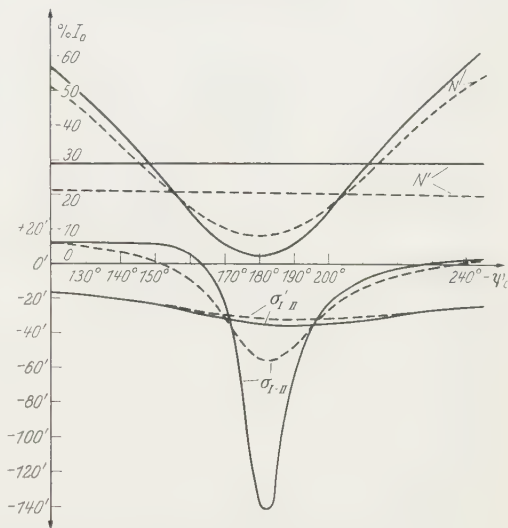


Fig. 6. Berechnete Werte für bedampfte Probe. N, N' reflektierte Intensität. $\sigma_{I-II}, \sigma'_{I-II}$ doppelte Kerr-Drehung. — — mit und — — ohne Absorption in der Schicht

Die folgende Figur stellt diese Verhältnisse dar. Es bedeuten:

N' = Intensität der reflektierten Normalschwingung parallel
 N = Intensität der reflektierten Normalschwingung senkrecht zur Einfallsebene polarisiert.

$$\left. \begin{array}{l} \sigma'_{I-II} = \text{zu } N' \\ \sigma_{I-II} = \text{zu } N \end{array} \right\} \text{ gehörige doppelte Kerr-Drehung.}$$

Als Abszisse wird ψ_0 gewählt, welches linear mit der Schichtdicke zusammenhängt, denn es ist $\psi_0 = \pi - S + S/F e$, wobei

$$S = \frac{2n_s d \cdot 2\pi \cdot \cos \chi}{\lambda}.$$

Zur Berechnung der Werte in Fig. 6 wurden benutzt die vorstehenden Gln. (1) bis (6c), die Grundgleichungen für den magnetooptischen

Kerr-Effekt von VOIGT⁸ und folgende Literaturwerte für $\lambda = 5461 \text{ \AA}$.

$$n_{\text{ZnS}} = 2,36^{13} \quad n_{\text{Stahl}} = 2,31 - i 3,30^{14}.$$

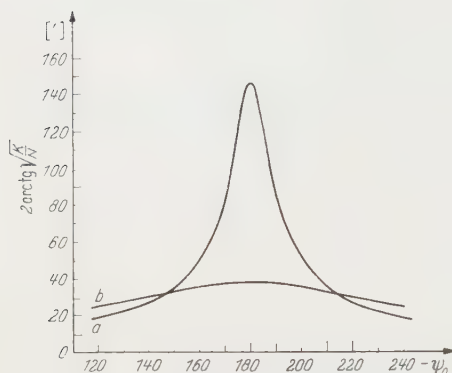
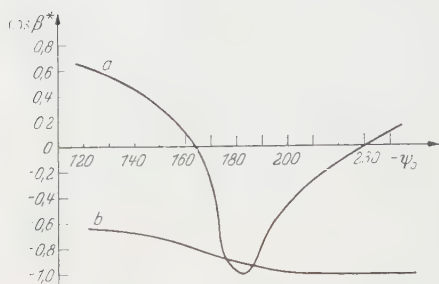


Fig. 7. a) I_0 senkrecht und b) I_0 parallel zur Einfallsebene polarisiert

Die in Fig. 6 dargestellten Verhältnisse werden durchsichtiger, wenn man sich verdeutlicht, daß die resultierende Kerr-Drehung einmal vom Größenverhältnis der Amplituden \mathfrak{R} und \mathfrak{N} , d.h. also von $\sqrt{K/N}$ und außerdem von der Phasenlage beider Amplituden zueinander bestimmt ist, weil

$$\sigma_1 \parallel$$

$$= \arctg (2 \cdot \sqrt{K/N} \cdot \cos \beta^*).$$

(3) von S. 312

In der folgenden Fig. 7 sind des halb $\arctg 2 \sqrt{K/N}$ sowie $\cos \beta^*$ für beide Polarisationsrichtungen als Funktion von ψ_0 aufgetragen. Das Produkt beider Funktionen liefert dann die resultierende Kerr-Drehung, wie sie in der vorangehenden Fig. 6 dargestellt ist.

3. Angaben zur experimentellen Durchführung der Untersuchungen

3.1. Art und Reihenfolge der Untersuchungen

Auf eine nach dem üblichen Verfahren polierte, aber nicht geglättete, streifenförmige Weicheisenprobe mit den Maßen $85 \times 14 \times 6 \text{ mm}$ wurde in einer Aufdampfanlage Balzers 500 eine keilförmige ZnS-Interferenzschicht gedampft. Die Anlage gestattete eine Photometrierung der von der Probe reflektierten Intensität bei $\varphi = 67^\circ = \varphi_P$ während des Bedampfungsvorgangs. Die Dicke des ZnS-Schichtkeils war in der Probenmitte so bemessen, daß für senkrecht zur Einfallsebene polarisiertes Licht der Wellenlänge 5461 \AA beim Einfallswinkel $\varphi_P = 67^\circ$ ein Minimum der Reflexion vorlag.

¹³ KOPPELMANN, G., u. K. KREBS: Z. Physik **145**, 486 (1956).

¹⁴ LANDOLT-BÖRNSTEIN, 5. Aufl., 1. Erg.-Bd., S. 472, Verf. MINOR.

Beim gleichen Einfallswinkel wurden dann längs der Probe Kerr-Drehungen und reflektierte Intensitäten für parallele und senkrechte Polarisationsrichtung gemessen.

Bei $\psi_0 = -180^\circ$ wurde für beide Polarisationsrichtungen die zusätzlich bei der Reflexion an der Probe erzeugte Streulichintensität bestimmt.

Die experimentelle Anordnung und Meßmethode zur Bestimmung der doppelten Kerr-Drehung entspricht im Prinzip der von W. HEINRICH verwendeten^{5,6}.

3.2. Beschreibung der experimentellen Anordnung (Fig. 8)

In der Brennebene einer Linse L ($f = 250$ mm) befindet sich eine nahezu punktförmige Lichtquelle Q (Osram Hg-Höchstdrucklampe HBO 107/1). Eine Lochblende BL_1 blendet hinter der Linse ein paralleles Lichtbündel aus. Es folgt ein Filter FLT für die grüne Hg-Linie 5461 \AA . Als Polarisator P wurde eine Polarisationsfolie verwendet. (Typ Käsemann Ks-MIK, Polarisationsgrad praktisch 100%.)

Q , L , BL_1 und P waren auf einer Zeißschiene befestigt, deren Neigung mittels JS verändert werden konnte. Eine Blende BL_2 diente zur totalen Abblendung des Lichtbündels. Die Probe war in der Querrichtung zwischen die Polschuhe eines Elektromagneten EM fest eingespannt. Letzterer stand auf einem Kreuztisch KT , der auf dem justierbaren Prismmentisch eines Spektrometers befestigt war. Der Rand

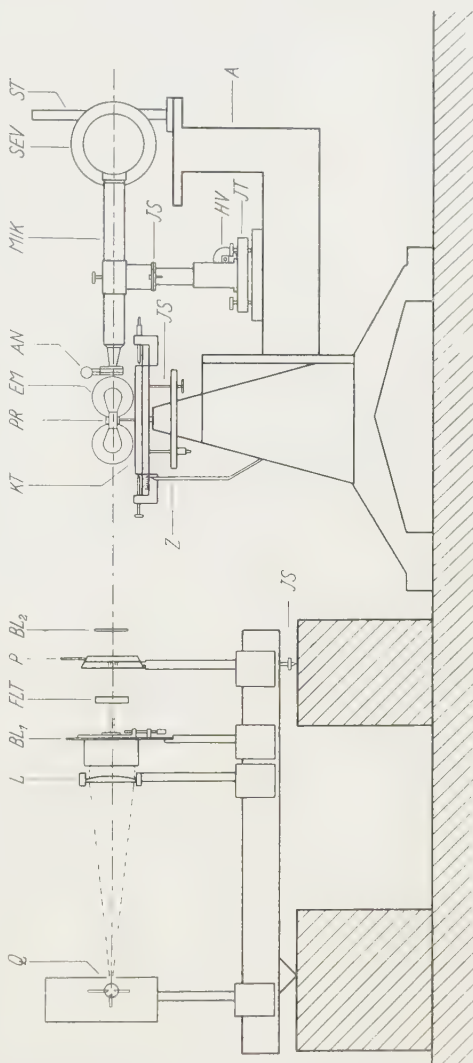


Fig. 8. Versuchsanordnung (Bezeichnung im Text)

war mit einer 360° -Einteilung versehen, eine Einstellungs-*marke* *Z*, die mit dem um die Spektrometerachse schwenkbaren Arm *A* fest verbunden war, gestattete eine Winkeleinstellungsgenauigkeit von $\pm 1/2^\circ$. Auf dem Arm *A* befand sich auf einem Justiertisch *JT* das Mikroskop *MIK*, das mittels einer Prismenführung *HV* um 20 mm vertikal verschiebbar war. Auf die Objektivhalterung konnte der Analysator *AN* aufgeklemmt werden (Polarisationsfolie Typ Käsemann *MIK*). An der Schraubenübersetzung des Analysators entsprachen 100 Skt 43 Winkelminuten. Das Objektiv des Mikroskops bildete die Probenoberfläche in etwa achtfacher Vergrößerung auf die Photokathode eines Sekundärelektronenvervielfachers ab (Typ 137A). Er konnte mit Gesamtspannungen von 1000 V, 900 V, 750 V betrieben werden, die von einem Stabilisator (Typ Knott, NSHR 1000/1) konstant auf 0,05 % gehalten wurden. Gegen das Streufeld von *EM* war der *SEV* durch einen *Mu*-Metallzylinder abgeschirmt. Der Gesamtstrom des *SEV* wurde bei subjektiver Beobachtung mit einem Ruhstrat Galvanometer (Typ ESG 5) gemessen.

Mit dem *SEV* wird dann die vom Analysator durchgelassene Intensität bei den Magnetisierungsrichtungen I und II in Abhängigkeit von der Analysatorstellung σ gemessen. Aus den Meßkurven ergibt sich die doppelte Kerr-Drehung als horizontale Verschiebung zweier Parabeläste.

Bei der Messung der reflektierten Intensität wird die gleiche Apparatur, jedoch ohne Analysator verwendet. Meßmikroskop und *SEV* in den direkten Weg des Lichtbündels geschwenkt, ergibt die gesamte auf die Probe fallende Intensität. Die von der Probe reflektierte Intensität ist dann, auf gleiche Weise gemessen, in Prozenten der einfallenden Intensität bekannt.

4. Ergebnisse der Messungen

4.1. Meßwerte

Die bei den Messungen erhaltenen Werte sind in der Tabelle und in Fig. 9 vereinigt.

- l = Abstand des Meßgebietes vom Streifenende mit der geringeren Schichtkeildicke.
- ψ_0 = Schichtdickenmaß, berechnet mit den Werten von N/I_0 aus Gl. (I) S. 312 (s. auch S. 320).
- N' = Intensität der reflektierten Normalschwingung parallel
- N = Intensität der reflektierten Normalschwingung senkrecht zur Einfallsebene polarisiert.
- σ'_{I-II} = zu N' } gehörige doppelte Kerr-Drehung.
- σ_{I-II} = zu N }

Tabelle

l (mm)	ψ_0 (°)	σ_{I-II} (')	σ'_{I-II} (')	N (% I_0)	N' (% I_0)
5	-141,5	+ 9,1	- 11,5	37,2	29,6
11	-149	+ 7,1	- 10,7	30,8	29,8
16	-155	+ 8,6	- 11,7	19,8	30,3
22,5	-163,5	+ 5,4	- 11,9	13,6	31
31	-172,5	- 4,8	- 13,4	7,3	30,6
36,5	-180	- 17,2	- 14,1	6,4	30,2
41	-186	- 29	- 14,6	6,1	31
44	-190,3	- 25,6	- 16,1	—	—
51	-198	- 12,9	- 15,8	12,9	30
56,5	-204,5	- 9,5	- 15,5	19,5	30
64	-213	- 5,6	- 15	32,7	31
72	-221,5	- 2,6	- 13,4	39,8	28,9
78	-226,5	- 1,3	- 12	45,5	31

4.2. Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit der Theorie

Der Vergleich der gemessenen mit den berechneten Kurven ohne Berücksichtigung der Absorption ergibt zunächst folgendes:

1. Die reflektierte Intensität von parallel zur Einfallsebene polarisiertem Licht ist längs der Probe etwa konstant. Ihr Wert stimmt mit dem berechneten Wert von 29% I_0 annähernd überein.

2. Die reflektierte Intensität von senkrecht zur Einfallsebene polarisiertem Licht hat in der Probenmitte ein Minimum. Es beträgt 6% der einfallenden Intensität I_0 . Der berechnete Wert beträgt 2,1%.

3. Der Verlauf der Kerr-Drehungen für Licht parallel und senkrecht zur Einfallsebene polarisiert, zeigt im Prinzip das gleiche Verhalten wie der berechnete Verlauf. Doch sind sämtliche gemessenen Werte kleiner als die berechneten.

Einen besseren Vergleich der gemessenen und berechneten Werte liefert die Darstellung der Meßwerte in Abhängigkeit von dem der Rechnung zugrunde liegenden Parameter ψ_0 . Aus den gemessenen Werten der reflektierten Intensität N des senkrecht zur Einfallsebene

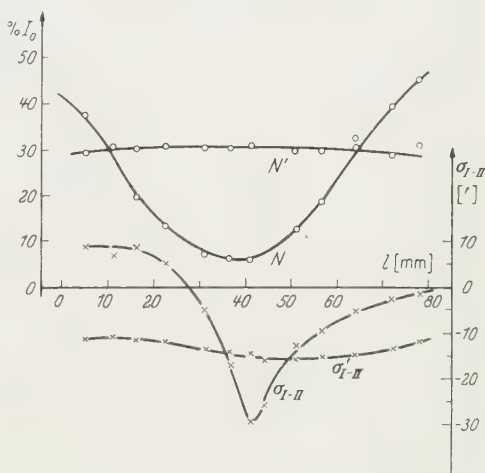


Fig. 9. Meßwerte in Abhängigkeit von l (Bezeichnung s. Tabelle)

polarisierten Lichtes wurden aus der Airyschen Gl. (I) die zugehörigen Werte von ψ_0 berechnet. Da die Schichtdicke linear mit ψ_0 zusammen-

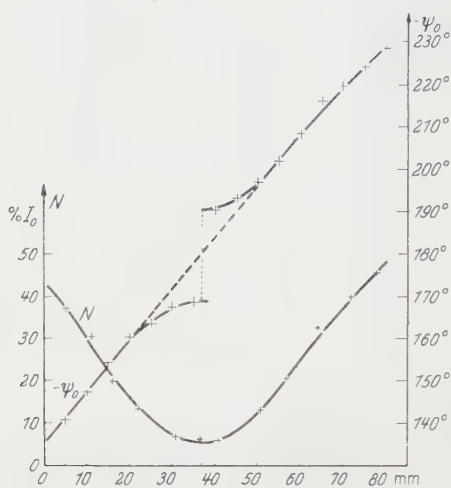


Fig. 10. Bestimmung von ψ_0 am ZnS-Schichtkeil

hängt (s. S. 315), ist ψ_0 längs des Probenstreifens, d.h. gegen l aufgetragen, ein direktes Maß für die Schichtdicke d . Da der theoretisch geforderte minimale Wert von 2,1 % I_0 entsprechend $\psi_0 = -180^\circ$ jedoch experimentell nicht gemessen wurde, kann ψ_0 von größeren Werten an -180° herankommend, diesen Wert selbst nicht erreichen; es muß umgekehrt von der Minimumlage aus mit einem Wert $< -180^\circ$ weiter abnehmen. ψ_0 , gegen l als Abszisse aufgetragen, ist also bei der Abszisse des Minimums auf der

Probe unstetig. Für Werte von l , die vom Minimum beidseitig weiter entfernt liegen, ergibt $\psi_0 = \psi_0(l)$ praktisch zwei Geraden mit gleicher Steigung, die ineinander übergehen, so daß man die Unstetigkeit des berechneten ψ_0 bei -180° nachträglich korrigieren und auf einen praktisch linearen Schichtdickenzuwachs längs der Probe schließen kann.

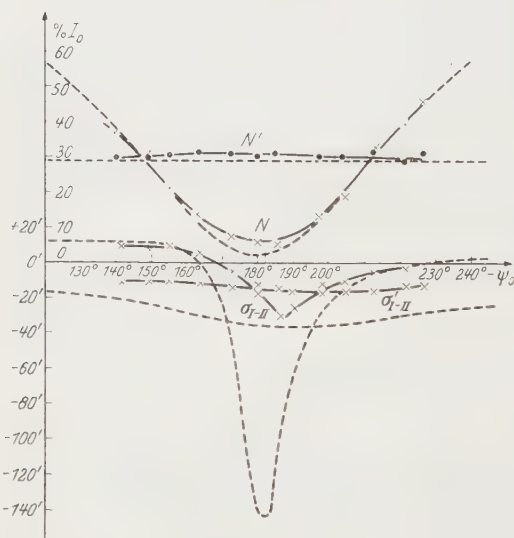


Fig. 11. ——— Gemessene Werte, - - - nicht korrigierte berechnete Werte

Gemessene und berechnete Kurven zeigt dann Fig. 11.

Für Licht senkrecht zur Einfallsebene polarisiert stimmen überein der charakteristische konstante Teil bis etwa -155° , der Vorzeichenwechsel in der Umgebung von $\psi_0 = -165^\circ$, die Lage

des Maximums bis auf 5° und der folgende flache Abfall gegen den Wert $\sigma_{I-II} = 0$.

Der Verlauf von σ'_{I-II} für Licht parallel zur Einfallsebene polarisiert zeigt insofern ein mit der Theorie übereinstimmendes charakteristisches Verhalten, als die Werte der resultierenden Kerr-Drehung nicht symmetrisch um $\psi_0 = -180^\circ$ liegen, sondern für $\psi_0 < -180^\circ$ deutlich größer sind als für $\psi_0 > -180^\circ$. Das stimmt qualitativ überein mit den in Fig. 7 dargestellten Verhältnissen. Es ist $|K/N|$ symmetrisch zu $\psi_0 = -180^\circ$; dies ist jedoch nicht der Fall für $\cos \beta^*$, welcher für $\psi_0 > -180^\circ$ kleiner ist als für $\psi_0 < -180^\circ$.

Es fällt auf, daß die hier gemessenen Werte um einen annähernd konstanten Faktor 1/2,3 kleiner sind als die gemessenen Werte.

Vor der Fehlerdiskussion seien noch einige Bemerkungen zum Phasenfaktor $\cos \beta^*$ angeschlossen.

Der grundsätzliche Gang des Phasenfaktors $\cos \beta^*$ mit ψ_0 wird durch die Messungen bestätigt. Sein Einfluß auf die resultierende Kerr-Drehung ist besonders stark für senkrecht zur Einfallsebene polarisiert auf die Probe fallendes Licht, und zwar besonders in der Umgebung des Minimums der reflektierten Intensität. Bei wenig verkleinerter Schichtdicke fällt die Kerr-Drehung stark ab, weniger stark bei zu großer Schichtdicke.

Als Beispiele mögen folgende Zahlenwerte dienen. Für das Maximum der Kerr-Drehung entsprechend $\psi_0 \approx -183^\circ$ erhält man rechnerisch eine Schichtdicke von 460 Å. Nach Messung und Rechnung wird die resultierende Kerr-Drehung 0 bei $\psi_0 \approx -165^\circ$. Das ergibt eine Schichtdicke von 390 Å, d.h. gegen die optimale Schichtdicke eine Änderung von 16%.

Für die Beobachtung Weißscher Bereiche ist nun eine möglichst große resultierende Kerr-Drehung erwünscht. Die angeführten Überlegungen zeigen, daß man das nur erreicht, wenn man ψ_0 möglichst genau zu -183° trifft.

Dies experimentell zu erreichen, ist insofern nicht ohne Schwierigkeit, als die Änderung der reflektierten Intensität mit ψ_0 , d.h. die Ableitung $dN/d\psi_0$ in der Umgebung von $\psi_0 = -180^\circ$ gering ist, bei $\psi_0 = -180^\circ$ überhaupt verschwindet.

Mit diesen Überlegungen werden nun zwei Erfahrungstatsachen geklärt, die beim Herstellen der Aufdampfschichten immer wieder gemacht werden:

1. Die Größe der resultierenden Kerr-Drehung schwankt nicht unerheblich auch bei anscheinend gleichartig bedampften Proben.

2. Es ist besser, eine Schicht etwas dicker als die Minimumschicht zu dampfen.

Gründe hierfür: a) $\cos \beta^*$ wird -1 , d.h. dem Betrage nach ein Maximum bei $\psi_0 \approx -183^\circ$.

b) für Werte $\psi_0 < -183^\circ$ fällt die resultierende Kerr-Drehung weniger stark ab als für $\psi_0 > -183^\circ$.

4.3. Diskussion möglicher Fehlerquellen

Für die Abweichungen von Theorie und Experiment können verschiedene Ursachen in Betracht kommen.

a) *Absorption in der Aufdampfschicht.* Die in Fig. 6 dargestellten, die Absorption berücksichtigenden Kurven ergeben sich aus der Annahme

¹⁵ POHL, R.W.: Optik und Atomphysik, 10. Aufl., S. 147.

einer mittleren Reichweite des Lichtes von $1\ \mu$. ($1/7$ der mittleren Reichweite des Lichtes in Pech!¹⁵ Also mit Sicherheit zu groß!)

b) *Magnetisch nicht gesättigte Probe, falsche Magnetisierungsrichtung.* Die Probe war in der Querrichtung zwischen die Polschuhe des Elektromagneten EM eingespannt, hatte also in dieser Richtung einen großen Entmagnetisierungsfaktor. Der mit Eisenfeilspänen auf der Probe markierte Feldverlauf bei maximaler Stromstärke im Elektromagneten lieferte kein Anzeichen, daß wesentliche Komponenten der Magnetisierung im Meßgebiet nicht in der Einfallsebene lagen oder nicht parallel verliefen. — Die Messung der doppelten Kerr-Drehung auf unbedampfter Probe in der gleichen Anordnung ergab für $\varphi = 45^\circ$ bei senkrecht zur Einfallsebene polarisiertem Licht acht Winkelminuten, in Übereinstimmung mit Werten, die bei gesättigten Proben erhalten werden.

c) *Mangelhafte Monochromasie.* Das verwendete Filter für die grüne Hg-Linie zeigte im Gelben noch eine geringe Durchlässigkeit. Es wird vermutet, daß die als zu groß gefundene reflektierte Intensität N bei $\psi_0 = -180^\circ$ auf diesen Anteil zurückzuführen ist. Besteht das senkrecht zur Einfallsebene polarisiert auf die Probe fallende Licht aus mehreren Wellenlängen, so kann man sich leicht klar machen, daß dann bei $\psi_0 = -183^\circ$ die resultierende Kerr-Drehung gegenüber monochromatischem Licht verkleinert sein muß. Für jede andere Wellenlänge ist an dieser Stelle die resultierende Kerr-Drehung kleiner, da für diese anderen Wellenlängen an dieser Stelle $\psi_0 \neq -183^\circ$ ist. (ψ_0 ist ein wellenlängenbezogener Maßstab.) Die resultierende Drehung ist dann ebenfalls verkleinert. Bei der genauen Untersuchung der Verhältnisse hat man jedoch Amplituden und Phasen genau in Rechnung zu setzen.

Es ist nicht auszuschließen, daß mangelhafte Monochromasie eine der Ursachen für die im Vergleich zur Rechnung zu klein gefundene Kerr-Drehung ist.

d) *Korrekturmöglichkeiten.* Man kann fragen, in welcher Hinsicht die theoretisch berechneten Werte korrigiert werden können oder müssen, um zu einer besseren Übereinstimmung mit dem Experiment zu gelangen. Man könnte die bei der Berechnung von σ_{I-II} zugrunde gelegten berechneten Werte von N ersetzen durch die wirklich gemessenen. Die gemessenen Werte sind um den Faktor 3 bei $\psi_0 \approx -180^\circ$ größer als die berechneten. Die Einführung der gemessenen größeren Werte von N wirkt dann nach Gl. (3) im Sinne einer Verkleinerung der berechneten Werte. Als maximal zu erwartende Kerr-Drehung ergibt sich dann $88'$ an Stelle von $143'$.

Die Gleichungen von W. VOIGT für den meridionalen Kerr-Effekt liefern die Abhängigkeit der resultierenden Kerr-Drehung allein vom

Brechungsindex des an das Ferromagnetikum angrenzenden Dielektrikums, wenn man in die Gleichungen an Stelle von n_{Fe} den relativen Brechungsindex $n_{\text{Fe}}/n_{\text{Diel}}$ einsetzt. Für kleine Winkel ergibt sich dann eine quadratische Abhängigkeit der resultierenden Kerr-Drehung vom Brechungsindex des Dielektrikums.

Die experimentellen Ergebnisse sind, — besonders auffallend im Fall parallel zu Einfallsebene polarisierter Normalschwingung —, um einen nahezu konstanten Faktor $1/2,3$ kleiner als die berechneten Werte. Dieser Faktor entspricht aber ungefähr dem Brechungsindex des aufgedampften Dielektrikums. Man findet experimentell also nur einen linearen Zusammenhang zwischen vergrößerter resultierender Kerr-Drehung und dem Brechungsindex des Dielektrikums, genau so wie im Fall polarer Magnetisierung der Proben.

Zusammenfassung

Der Charakter der gemessenen und berechneten Kurven erweist sich als im wesentlichen gleich. Hieraus darf vielleicht der Schluß gezogen werden, daß die theoretischen Überlegungen bezüglich der Interferenzvorgänge die wirklichen Vorgänge im Prinzip richtig beschreiben.

Eine hinreichende Erklärung für die auftretenden Differenzen kann nicht gegeben werden.

Herrn Professor GERLACH danke ich für sein freundliches Interesse an dieser Arbeit und fruchtbare Diskussion. Mein Dank gilt in gleicher Weise Herrn Privatdozent Dr. KRANZ für seine Anregungen, Anleitungen und hilfreiche Diskussionen bei der Durchführung dieser Arbeit. Der Werkstatt des Instituts unter Leitung von Herrn Mechanikermeister SCHARF danke ich für ihre stets freundliche Hilfsbereitschaft und die Ausführung der mechanischen Arbeiten. Die Aufdampfanlage hat dankenswerterweise die Deutsche Forschungsgemeinschaft zur Verfügung gestellt.

Aus dem I. Physikalischen Institut der Universität München

Eine Anordnung zur photographischen Registrierung von Weißschen Bereichen bei Belichtungszeiten der Größenordnung 1 msec*

Von

W. DRECHSEL

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 8. Mai 1961)

Es wird eine Apparatur beschrieben, in der es mit Hilfe der durch Aufdampfschichten vergrößerten magneto-optischen Kerr-Drehung gelingt, ferromagnetische Bereichsstrukturen bei Belichtungszeiten von etwa 1 msec photographisch zu registrieren.

Es werden Bereichsveränderungen an einem Eisenkristall photographisch registriert, die sich in einem Zeitraum von 0,2 sec abspielen.

Die Methode der Sichtbarmachung Weißscher Bereiche mit Hilfe des magneto-optischen Kerr-Effekts gestattet es im Prinzip, Bereichsänderungen trägheitslos zu beobachten. Die zur photographischen Registrierung notwendigen Belichtungszeiten liegen aber in der Größenordnung von Minuten. Bei Verwendung von Aufdampfschichten werden die Belichtungszeiten um einige Größenordnungen kleiner. Während in der in¹ beschriebenen Anordnung noch eine Belichtungszeit von etwa 1 min notwendig war, wurde nun eine Apparatur entwickelt, in der als Lichtquelle eine Elektronenblitzröhre diente, deren Leuchtdauer etwa 1 msec betrug.

Mit dieser Anordnung war es möglich, Bereichsänderungen auf einem Einkristall photographisch zu registrieren, die sich noch bis etwa 0,2 sec nach dem Abschalten des felderregenden Elektromagneten ergaben.

1. Experimentelle Anordnung

a) Visuelle Beobachtung. Die optische Anordnung entspricht im Prinzip der in¹ geschilderten. Ein Objektiv 6, $f = 60$ mm, d/f etwa $1/10$, entwirft das reelle Bild der Probenoberfläche auf der Mattscheibe oder dem Film 7 einer Spiegreflexkamera. Die Beleuchtung der Probe erfolgt durch die Beobachtungslichtquelle 1 und Kollimatorlinse 2. Polarisator 3 und Analysator 5 sind Polarisationsfolien vom Typ Käsemann Ks-MIK.

* Aus der Dissertation des Verfassers, Universität München 1961.

¹ KRANZ, J., u. W. DRECHSEL: Z. Physik **150**, 632 (1958).

b) *Photographische Registrierung.* Die Elektronenblitzröhre 8 (Typ PTL BLR 250/3) beleuchtet ohne Kollimatorlinse die Probenoberfläche, die mit einem Abbildungsmaßstab 4/1 auf den Film abgebildet wird. Über die Elektronenblitzröhre wird eine Kapazität von 128 μF bei einer Spannung von etwa 3 kV entladen. Die Zündung der Elektronenblitzröhre erfolgte um ein Zeitintervall Δt vor oder nach Abschalten des Stromes in den Magnetisierungsspulen eines Elektromagneten.

Zur variablen Veränderung von Intervallen von 0,1 msec bis 10 msec diente ein Helmholtz-Pendel. Feld und Blitzkontakt waren auf gegenüberliegenden verschiebbaren Schlitten angebracht.

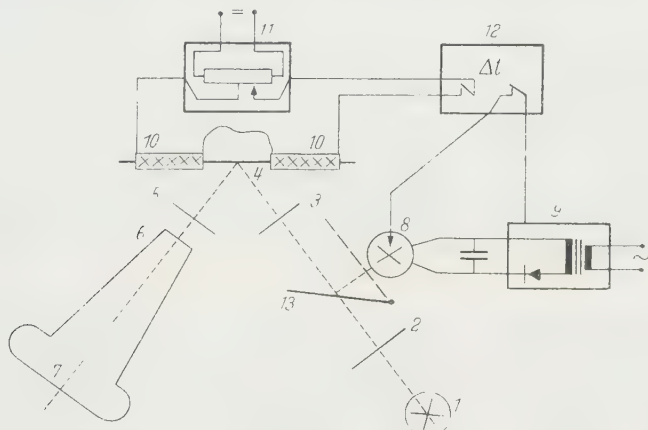


Fig. 1. 1 Beobachtungslichtquelle, 2 Beleuchtungslinse, 3 Polarisator, 4 Probe, 5 Analysator, 6 Kamera mit Objektiv, 7 Mattscheibe oder Film, 8 Elektronenblitzröhre, 9 Netzgerät mit Kondensatorbatterie, 10 Feldspulen, 11 Stromversorgung von 10, 12 Zeitverzögerung zwischen Feld- und Zündkontakt durch Helmholtz-Pendel, 13 Spiegel

Für Verzögerungsintervalle von 10 msec bis 1 sec wurde der durch RC-Entladung verzögerte Abfall eines Siemens-Relais (Kleinrelais, Spule nach T.Bv. 6500/422) benutzt. Durch Parallelschaltung von Kapazitäten, die eine Verzögerung von 10, 20, 40, 100, 200 und 400 msec bewirkten, konnten so in Schritten von 10 msec Verzögerungsintervalle von 10 msec bis 1 sec erreicht werden.

Die Eichung beider Verzögerungsschalter wurde durchgeführt mit einem Galvanometer, dessen Schwingungsdauer 25 sec und ballistische Ladungsempfindlichkeit etwa $7,7 \cdot 10^5 \text{ cm/Cb}$ betrug. Der Verzögerungsschalter wurde dann jeweils so geschaltet, daß innerhalb des verzögerten Intervalls Δt ein Strom bekannter Größe über das Galvanometer floß. Aus dann bekannter Ladungsmenge und Stromstärke kann Δt bestimmt werden.

Die Blitzdauer von etwa 0,6 msec — Bestimmung durch Aufnahme einer rotierenden Scheibe bekannter Kreisfrequenz —, liefert die Grenze

der zeitlichen Auflösung des Ablaufs von Bereichsveränderungen. Ist die Dauer des Übergangszustandes klein gegen die Blitzdauer, erhält man auf einer Aufnahme Anfangszustand A und Endzustand E der Bereichsänderung, wobei je nach relativer Lage von Blitzbeginn und Bereichsänderungsbeginn die den beiden magnetisch stabilen Zuständen

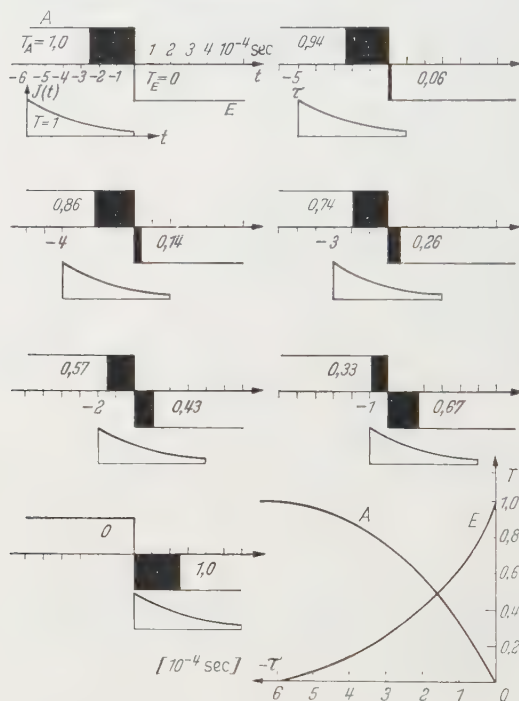


Fig. 2. Erklärung im Text

A und E zukommenden effektiven Belichtungszeiten verschieden groß sind, diese also auch in verschiedener Schwärzung erscheinen.

Weil die Lichtintensität J des Blitzes zeitabhängig ist, nämlich vom Anfangswert her exponentiell abklingt, ergibt sich für die Zustände A und E eine Verteilung der relativen Belichtungsdauer, wie sie in Fig. 2 dargestellt ist. Als relative Belichtungsdauer wird der Ausdruck $\int J(t) dt$ benutzt. Die geschwärzten Flächen bei A und E in Fig. 2 entsprechen dann den relativen Belichtungsdauern T der Zustände. Bei $t=0$ wird

die Feldstärke sprunghaft geändert — dieser Zeitpunkt wird gleichgesetzt mit dem Zeitpunkt der Bereichsänderung. Zündung des Blitzes erfolgt bei $t=\tau$.

Serie I (Fig. 3) zeigt das entsprechende experimentelle Ergebnis. Es entspricht qualitativ dem erwarteten Verlauf.

Die Versuchsanordnung hierzu war folgende:

Auf den Enden einer streifenförmigen Probe (Maße: 120 mm \times 10 mm \times 0,5 mm) waren zwei Magnetisierungsspulen von je 300 Windungen auf einer Länge von je 30 mm angebracht. Auf der geglähten und polierten Probenmitte war die Interferenzschicht aufgedampft. Bei einer Stromstärke von etwa 0,3 Amp in den Magnetisierungsspulen erschien die Probe vom Bereichsbild her als magnetisch gesättigt.

Wurde nach Abschalten dieses Stromes die Stromstärke von $-0,05$ Amp auf 0 Amp und umgekehrt sprunghaft geändert, so entsprach fast immer gleicher Stromstärke das gleiche Bereichsbild. Der Anfangszustand *A* stellt die Bereichsverteilung bei $I = -0,05$ Amp dar.

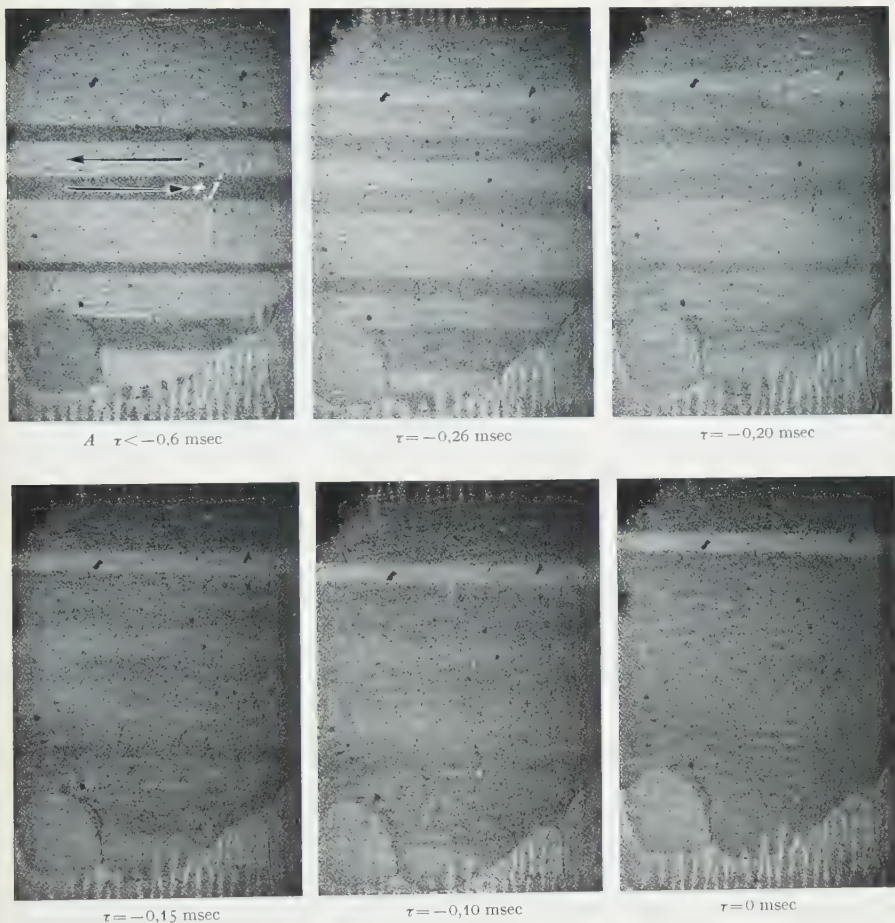
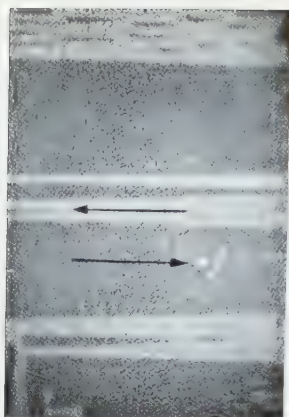


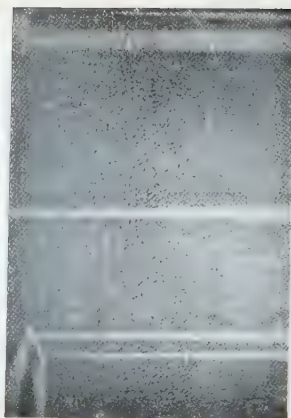
Fig. 3. Serie I

2. Beispiel für die Anwendung der Anordnung

Serie II zeigt einen Fall, bei dem die Bereichsänderungen auf der Oberfläche eines Eiseneinkristalls sich abspielen in einem Zeitraum von etwa $0,2$ sec nach Abschalten des Stromes in einem das Feld erzeugenden Elektromagneten. Die relativ kurze Blitzdauer ermöglicht hier eine Auflösung des Bewegungsvorgangs der Weißschen Bereiche.



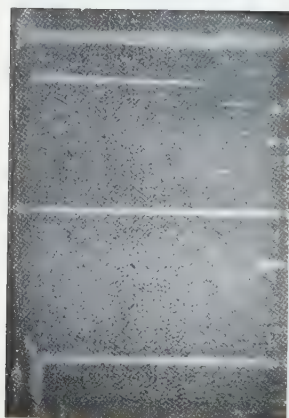
A $\tau = 0 \text{ msec}$



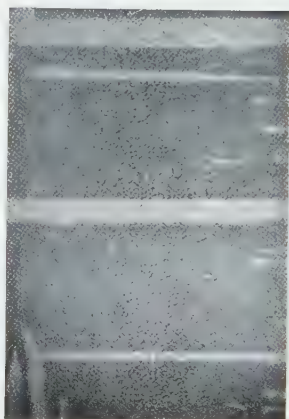
$\tau = 4,5 \text{ msec}$



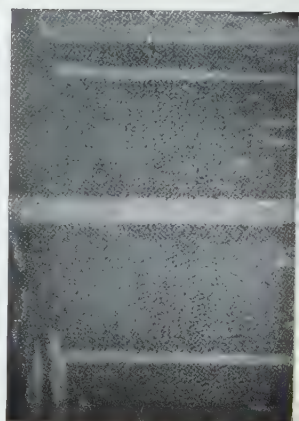
$\tau = 20 \text{ msec}$



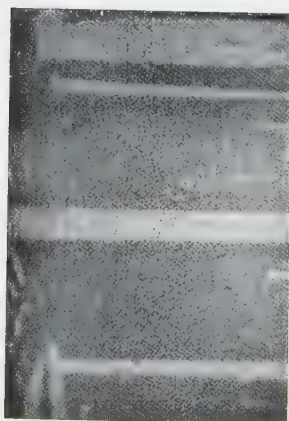
$\tau = 40 \text{ msec}$



$\tau = 70 \text{ msec}$



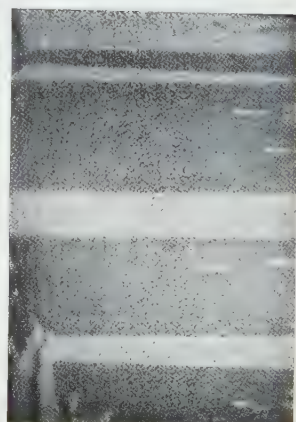
$\tau = 80 \text{ msec}$



$\tau = 110 \text{ msec}$



$\tau = 150 \text{ msec}$



E

Fig. 4. Serie II

Der Einkristall befand sich in dem zwischen den Polschuhen eines Elektromagneten erzeugtem Feld. Eine $[100]$ -Richtung liegt parallel zum Feld und zur Oberfläche des Einkristalls. Bei einer Stromstärke von etwa 0,3 Amp erschien der Einkristall vom Bereichsbild her gesättigt. Es ergab sich fast immer das gleiche Bereichsbild, für einen Anfangszustand A und den Endzustand E , wenn nach Abschalten des Sättigungsstromes die Stromstärke zunächst stetig auf $-0,08$ Amp verändert und dann sprunghaft zwischen diesem Wert und 0 Amp geändert wurde.

Die Zündung des Blitzes erfolgte um die angegebenen Zeiten nach Abschalten des Stromes im Elektromagneten. Es muß dabei erwähnt werden, daß die angegebenen Zeiten, in denen eine gewisse dargestellte Bereichsverteilung erreicht war, von Schaltung zu Schaltung etwas variierten. Mit anderen Worten: Der Übergang von A nach E und zurück nach A ist tatsächlich kein ideal reversibler Weg. Die Bereichsverteilung ist bei jedem Start von A aus etwas verschieden, deshalb ergeben sich gleiche Zustände nicht in allen Einzelheiten wiederholt, sondern nur in wesentlichen Zügen. Solche Abweichungen sind in der folgenden Serie leicht erkennbar. Sie sind anscheinend auch dafür verantwortlich, daß der Zeitablauf der Bereichsänderung nur im Grundzug und in der Größenordnung der Dauer konstant bleibt, von Fall zu Fall aber etwas variiert.

Sowohl Erfahrung als auch Abschätzung zeigen, daß es sich bei den beobachteten langdauernden Bereichsänderungen mit großer Wahrscheinlichkeit um Nachwirkungserscheinungen handelt.

Vom magnetischen Fragenkomplex abgesehen zeigen jedoch die Aufnahmen der Serie II (Fig. 4), daß es mit Hilfe der verstärkten magneto-optischen Kerr-Drehung experimentell möglich ist, Bereichsveränderungen photographisch aufzulösen und zu registrieren, die sich in Zeiträumen größer als 10 msec abspielen.

Herrn Professor GERLACH danke ich für sein freundliches Interesse an dieser Arbeit und fruchtbare Diskussion. Mein Dank gilt in gleicher Weise Herrn Privatdozent Dr. KRANZ für seine Anregungen, Anleitungen und hilfreiche Diskussionen bei der Durchführung dieser Arbeit. Der Werkstatt des Instituts unter Leitung von Herrn Mechanikermeister SCHARF danke ich für ihre stets freundliche Hilfsbereitschaft und die Ausführung der mechanischen Arbeiten. Die Aufdampfapparatur hat dankenswerterweise die Deutsche Forschungsgemeinschaft zur Verfügung gestellt.

Aus dem Institut für theoretische Physik der Universität Heidelberg

Zerfall negativer Myonen in der K -Schale

Von

L. KRÜGER und J. ROTHLEITNER

Mit 3 Figuren im Text

(Eingegangen am 15. Juni 1961)

The decay rate of bound muons from the K -shell and the spectrum of the decay electrons are calculated for seven elements up to lead. The muon is represented by a nonrelativistic wave function in the potential of a realistic nuclear charge distribution. The electron wave function is expanded in partial waves which allows to take into account exactly the relativistic and the finite nuclear size effects. The decay rate decreases monotonically but slowly with increasing atomic number. This agrees with earlier theoretical predictions but contradicts most of the experimental results for medium as well as high atomic number.

§ 1. Einleitung

Negative Myonen einer Energie der Größenordnung 100 MeV oder weniger erreichen nach Eintritt in Materie innerhalb von Zeiten, die sehr kurz im Vergleich mit der Lebensdauer der Myonen sind, die K -Schale eines μ -mesonischen Atoms, von wo sie entweder durch den Zerfall $\mu^- \rightarrow e^- + \nu + \bar{\nu}$ oder durch Einfang in den Kern $\mu^- + N \rightarrow N' + \nu$ verschwinden. PORTER und PRIMAKOFF¹ haben zuerst darauf hingewiesen, daß die Lebensdauer der Myonen gegen Zerfall und das Spektrum der beim Zerfall emittierten Elektronen durch die Bindung der Myonen in der K -Schale beeinflußt werden. Das Verhältnis $R(Z) = A(Z)/A(0)$ der Zerfallsrate $A(Z)$ der im Atom der Ladungszahl Z gebundenen Myonen zur Zerfallsrate $A(0)$ der Myonen im Vakuum bzw. der positiven Myonen ist dann in guter Näherung gegeben als:

$$R(Z) = 1 - \eta B(Z), \quad (1)$$

wobei $B(Z)$ die Bindungsenergie der Myonen in Einheiten der Ruhmasse angibt. Der Parameter η hängt von der genauen Form des Potentials ab und ist mit Z schwach veränderlich; es gilt $\eta \approx 10$ für $a \gg R^*$ (Coulomb-Potential) und $\eta \approx 7,5$ für $a \ll R$ (Oszillatorpotential).

Ähnliche Formeln wurden schon früher angegeben^{2,3,4,5}.

* a = Bohrscher Radius des Myons in der K -Schale, R = Kernradius.

¹ PORTER, C.E., and H. PRIMAKOFF: Phys. Rev. **83**, 849 (1951).

² KHURI, N.D., and A.S. WIGHTMAN: Zit. in Ref. ⁶.

³ ÜBERALL, H.: Nuovo Cim. **15**, 163 (1960).

⁴ HUBY u. NEWNS: Private Mitteilung, zit. in Ref. ⁷.

⁵ Für hohe Z vgl. man auch: PRIMAKOFF, H., zit. bei YOVANOVITCH, D.D.: Phys. Rev. **117**, 1580 (1960).

In jedem Fall hat die Bindung des Myons ein monotones Abfallen der Zerfallsrate $R(Z)$ mit Z zufolge.

Dagegen hat die Anziehung des Elektrons im Endzustand durch den Kern die Tendenz, $R(Z)$ zu vergrößern, so daß im Prinzip je nach der Größe und Z -Abhängigkeit dieses Effektes mit $R(Z) > 1$ für gewisse Werte Z gerechnet werden muß. Hierauf wurde zum erstenmal im Zusammenhang mit der Interpretation von experimentellen Werten $R(Z)$ aufmerksam gemacht⁶, da die Experimente einen unerwarteten, der Gl. (1) widersprechenden Verlauf von $R(Z)$ mit Z zeigen, nämlich ein ausgeprägtes Maximum $R \approx 1,2$ für $Z = 26$, während $R(Z)$ für große Z stark abfällt^{6,7,8,9}.

Die Frage, ob dieser experimentelle Verlauf von $R(Z)$ quantitativ durch die gegeneinander spielenden Effekte der Myonbindung im Atom und der Anziehung des Zerfallselektrons durch den Kern erklärt werden kann, war der Gegenstand der vorliegenden Untersuchung. Ähnliche Untersuchungen wurden von TENAGLIA¹⁰ und ÜBERALL^{3,11} für kleine Atomladungszahlen Z durchgeführt. Während der Durchführung unserer Rechnungen erschien eine Arbeit von GILINSKY und MATHEWS¹², die den gesamten Bereich von Z betrachtet. Alle Arbeiten ergaben eine monoton mit Z abfallende Zerfallsrate der Myonen in deutlichem Widerspruch zu den experimentellen Ergebnissen für $20 < Z < 30$. MATHEWS und GILINSKY fanden ferner, daß die theoretische Kurve für $R(Z)$ nur sehr langsam abfällt und für $Z = 82$ viel höher liegt als das Experiment.

Eine Schwierigkeit bei der theoretischen Berechnung von $R(Z)$ bereitet der Coulomb-Effekt auf das Elektron. GILINSKY und MATHEWS benutzten die von SOMMERFELD und MAUE¹³ und FURRY¹⁴ zum erstenmal angegebenen geschlossenen Näherungslösungen für relativistische Elektronen im Coulomb-Feld. Die dadurch entstehenden Fehler sollten nach ihrer Abschätzung für mittlere Z klein sein und für hohe Z von den durch Vernachlässigung der endlichen Ausdehnung des Kerns entstehenden Fehlern weitgehend kompensiert werden.

⁶ LUNDY, R.A., J.C. SENS, R.A. SWANSON, V.L. TELEGI and D.D. YOVANOVITCH: Phys. Rev. Letters **1**, 102 (1958).

⁷ ASTBURY, A., M. HUSSAIN, M.A.R. KEMP, N.H. LIPMAN, H. MUIRHEAD, R.G.P. VOSS and A. KIRK: Proc. Phys. Soc. Lond. **73**, 314 (1959).

⁸ BARRETT, W.A., F.E. HOLMSTROM and J.W. KEUFFEL: Phys. Rev. **113**, 661 (1959).

⁹ YOVANOVITCH, D.D.: Phys. Rev. **117**, 1580 (1960).

¹⁰ TENAGLIA, L.: Nuovo Cim. **13**, 284 (1959).

¹¹ ÜBERALL, H.: Phys. Rev. **119**, 365 (1960).

¹² GILINSKY, V., and J. MATHEWS: Phys. Rev. **120**, 1450 (1960).

¹³ SOMMERFELD, A., u. A.W. MAUE: Ann. d. Physik **22**, 629 (1935); vgl. auch BETHE, H.A., and L.C. MAXIMON: Phys. Rev. **93**, 768 (1954).

¹⁴ FURRY, W.H.: Phys. Rev. **46**, 391 (1934).

Um allen möglichen Fehlern zu entgehen und die endliche Kernaussdehnung exakt berücksichtigen zu können, haben wir eine Partialwellenzerlegung der Elektronenfunktion benutzt und das Problem unter Verwendung realistischer Myon-Wellenfunktionen, die FORD und WILLS¹⁵ angegeben haben, numerisch integriert¹⁶.

In §2 werden die Formeln und die Voraussetzungen für die Lösung zusammengestellt. In §3 geben wir die numerischen Ergebnisse an. §4 enthält die Diskussion der Ergebnisse.

§ 2. Formeln und Voraussetzungen für die numerische Lösung

Wir setzen die für den Myonzerfall maßgebliche schwache Wechselwirkung in der üblichen Form ($V-A$) voraus. Die Zerfallsrate der Myonen ist dann gegeben durch ($\hbar=c=1$ gesetzt):

$$\Lambda(Z) = 2\pi \int \frac{d^3\vec{p}}{2E} \frac{d^3\vec{q}}{2q} \frac{d^3\vec{t}}{2t} \sum_{\text{Spins}} |T|^2 \delta(\varepsilon - E - q - t) \quad (2)$$

mit dem Matricelement

$$T = G \int \bar{\psi}_e \gamma_\lambda \frac{1+\gamma_5}{2} \psi_\mu \bar{\psi}_\nu \gamma^\lambda \frac{1+\gamma_5}{2} \psi_{\bar{\nu}} d^3\vec{x}. \quad (3)$$

Diese Formeln gelten für die invariante Normierung der Kontinuumszustände:

$$\int \psi_p^\dagger(x) \psi_{p'}^\dagger(x) d^3x = 2E \delta^3(\vec{p} - \vec{p}'). \quad (4)$$

Es bedeuten: $\varepsilon = M - B$ die Gesamtenergie des Zerfalls (M die Masse, B die Bindungsenergie des Myons), E die Energie des Elektrons, $\vec{p}, \vec{q}, \vec{t}$ die Impulse des Elektrons und der beiden Neutrinos.

B und damit ε , dessen Größe empfindlich in die Zerfallsrate eingeht, entnehmen wir bei FORD und WILLS¹⁵, wo auch die Korrekturen von B durch die Vakuumpolarisation berücksichtigt sind.

Die Elektronenfunktion ψ_e zum asymptotischen Impuls \vec{p} und Spinzustand s entwickeln wir nach Partialwellen $\Phi_{\kappa\mu}^\mu$ zu festem Drehimpuls und fester Parität:

$$\psi_e(\vec{p}, s) = \sum_{\kappa\mu} a_{\kappa,\mu}(\vec{p}, s) \Phi_{\kappa\mu}^\mu. \quad (5)$$

¹⁵ FORD, K.W., and J.G. WILLS: Los Alamos Report, LAMS-2387 (1960).

¹⁶ Über ähnliche Untersuchungen berichteten HUFF, R.W., R.H. DALITZ and K. SMITH: Bull. Amer. Phys. Soc., Ser. II **6**, 269 (1961), und HAUSER, I., and R. J. MALHOT: Bull. Amer. Phys. Soc., Ser. II **6**, 34 (1961). Die Ergebnisse sind uns noch nicht bekannt.

Die Koeffizienten $a_{\kappa\mu}(\vec{p}, s)$ werden im Einklang mit der Normierung (4) durch die Randbedingung festgelegt:

$$\psi_e(\vec{p}, s) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} \frac{u(\vec{p}, s)}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}} e^{i\vec{p} \cdot \vec{r} + i\lambda \ln pr} + \text{einlaufende Kugelwelle} \quad (6)$$

mit

$$u^\dagger u = 2E \quad \text{und} \quad \hat{\lambda} = \frac{Z \alpha E}{p}.$$

Da Elektronen einer Energie $E < 5$ MeV einen vernachlässigbaren Beitrag zur Zerfallsrate der Myonen liefern, kann man die Elektronenmasse $m = 0$ setzen. Dadurch reduziert sich die Anzahl der Radialfunktionen auf die Hälfte (Einzelheiten hierzu finden sich im Anhang).

Für die Berechnung der Elektronenfunktionen wurde das Potential einer homogen geladenen Kugel benutzt, die dieselben Myon-Bindungsenergien liefert, wie eine im Einklang mit den Elektronen-Streuexperimenten stehende realistischere Kernladungsverteilung. Die Radien dieser äquivalenten homogenen Verteilung entnehmen wir bei FORD und WILLS¹⁵. Diese Näherung für das Potential sollte den Einfluß der endlichen Kernaussdehnung auf die Elektronenfunktionen genügend gut wiedergeben, da er für $Z = 26$ ohnehin noch zu vernachlässigen ist und für $Z = 82$ nur 10% Änderung in der Myonzerfallsrate bewirkt, wie Vergleichsrechnungen für punktförmigen Kern gezeigt haben (vgl. Tabelle). Weitere Einzelheiten und Formeln zur Elektronenfunktion finden sich im Anhang.

Da bei Berücksichtigung der relativistischen Anteile der Myon-Wellenfunktion ψ_μ die Formeln für die numerische Auswertung sehr unhandlich werden, haben wir die kleinen Komponenten der Funktion vernachlässigt. Wir setzen:

$$\psi_\mu = \frac{1}{\sqrt{4\pi}} \frac{G(r)}{r} \begin{pmatrix} \varphi \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\varphi = \text{Pauli-Spinor}) \quad (7)$$

und entnehmen $G(r)$ bei FORD und WILLS¹⁵, wo sich numerische Tabellen finden, die unter Voraussetzung realistischer Kernladungsverteilungen berechnet wurden. Die Vernachlässigung der relativistischen Bewegung des Myons ist die *einzig*e Näherung von Einfluß in unseren Rechnungen. Die dadurch entstehenden Fehler (vgl. §3) sind für mittlere Werte von Z gering, für höhere Werte von Z dagegen merklich, jedoch nicht so groß, daß sie die wichtigsten Schlußfolgerungen der Diskussion (vgl. §4) unsicher machen könnten.

Unter den genannten Voraussetzungen ergibt sich das Spektrum der emittierten Elektronen zu:

$$N(E) dE = \frac{G^2}{3(2\pi)^4} E^2 \int_0^{11} dk \sum_{\kappa=1}^{\infty} \kappa \{ (3W^2 - k^2)(I_+^2 + I_-^2) + 4Wk I_+ I_- \} dE \quad (8)$$

mit

$$\left. \begin{aligned} I_+ &= \int_0^\infty dr r G(r) k r j_{l(\kappa)}(kr) g_{+\kappa}(pr) \\ I_- &= \int_0^\infty dr r G(r) k r j_{l(-\kappa)}(kr) g_{-\kappa}(pr) \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

Dabei bedeutet $W = \varepsilon - E$ die an die Neutrinos abgegebene Energie, und k den Betrag des Gesamtimpulses $\vec{k} = \vec{q} + \vec{t}$ der Neutrinos.

$j_l(kr)$ sind die sphärischen Bessel-Funktionen und $g_{\pm\kappa}(pr)$ die Radialfunktionen des Elektrons (vgl. Anhang). Zu bemerken ist, daß das Elektronenspektrum als einfache Summe über κ , d.h. die Drehimpulse der Elektronen darstellbar ist. Die Beiträge der einzelnen Drehimpulse können getrennt berechnet werden und die Rechnung je nach der gewünschten Genauigkeit abgebrochen werden. Für $Z \leq 30$ wurde bis $\kappa = 10$, für $Z = 82$ bis $\kappa = 6$ summiert (vgl. Fig. 3).

Die integrierte Rate $A(Z, E_0)$ für Elektronen einer Energie $E > E_0$ ergibt sich aus (8) und (9) zu:

$$A(Z, E_0) = \int_{E_0}^{\varepsilon} N(E) dE. \quad (10)$$

Sie wird mit der entsprechenden Rate für den freien Myonzerfall verglichen:

$$A(0, E_0) = \int_{\frac{2E_0}{M}}^1 dx x^2 (3 - 2x) \cdot \frac{G^2}{96(2.7)^3}. \quad (11)$$

Daraus ergibt sich schließlich die von den Experimentatoren angegebene Größe

$$R(Z, E_0) = \frac{A(Z, E_0)}{A(0, E_0)}. \quad (12)$$

Für E_0 werden in §3 zwei verschiedene Fälle betrachtet.

§ 3. Ergebnisse

Es wurden die Elektronenspektren $N(E)$ und die integrierten Zerfallsraten $A(Z)$ mit Hilfe einer elektronischen Rechenmaschine vom Typ Siemens 2002 für sieben Werte Z berechnet. Die Ergebnisse sind in der Tabelle zusammengefaßt. Zu jedem Z ist die verwendete Myon-Bindungsenergie und der zur Berechnung der Elektronenfunktion verwendete Kernradius angegeben. Für Eisen und Blei sind Vergleichsrechnungen mit Elektronenfunktionen im Feld eines punktförmigen Kernes gemacht worden. Die Spektren zeigen die bekannte Aufweichung des oberen

Endes¹⁷. Die Coulomb-Kräfte des Kerns bewirken ferner, vor allem für hohe Z , eine erhebliche Verlagerung der spektralen Verteilung zu niedrigen Energien. Fig. 2 zeigt diese Ergebnisse anschaulich im Vergleich zum Spektrum freier Myonen. Der Einfluß der endlichen Kernaush-

Tabelle. Spektren $N(E)$ der Zerfallselektronen in MeV^{-1} und Zerfallsraten $R(Z)$ gebundener Myonen. Zur Bedeutung der Fälle (a) und (b) vgl. man den Text. Die Spektren sind so normiert, daß gilt:

$$R(Z) = 10^{-4} \int N(E) dE.$$

Zu jedem Element Z ist der zur Berechnung der Elektronenfunktionen verwendete Kernradius R in Fermi und die Bindungsenergie B der Myonen in der K -Schale in MeV angegeben.

Elektronenenergie E [MeV]	$Z=22$ $B=1,26$ $R=5,08$	$Z=24$ $B=1,48$ $R=5,15$	$Z=26$ $B=1,72$		$Z=30$ $B=2,22$ $R=5,28$	$Z=42$ $B=3,96$ $R=5,67$	$Z=51$ $B=5,38$ $R=6,10$	$Z=82$ $B=10,66$	
			$R=5,18$	$R=0$				$R=7,04$	$R=0$
11,0	56	59	61	62	66	83	98	168	222
13,8	81	85	87	88	94	115	133	206	271
16,6	108	112	116	117	123	148	168	238	311
19,3	137	142	146	147	154	180	200	263	335
22,1	166	172	176	178	185	212	232	282	350
24,8	196	202	207	209	215	242	259	290	346
27,5	225	232	236	239	245	269	283	290	335
30,3	254	261	265	267	272	290	298	277	303
33,0	280	287	290	293	300	307	306	256	269
35,8	305	310	312	315	315	313	300	214	214
38,6	322	327	327	329	324	308	284	178	165
41,3	331	334	331	332	320	280	242	125	115
44,1	324	327	319	320	299	240	192	89	73
46,9	290	285	272	273	245	176	140	52	42
49,6	212	203	184	186	159	108	80	29	20
52,4	107	104	97	96	86	61	46	14	9
55,1	38	38	38	37	34	26	20	7	3
57,9	12	12	12	12	13	11	7	3	1
60,7	3	3	4	3	4	4	3	1	—
$R(Z)$, Fall (a)	0,975	0,988	0,979	0,985	0,978	0,957	0,939	0,884	1,024
$R(Z)$, Fall (b)	0,968	0,978	0,972	0,978	0,964	0,938	0,914	0,813	0,916

nung ist für $Z=26$ noch unerheblich, tritt aber für $Z=82$ merklich hervor. Die integrierten Zerfallsraten sind in der Tabelle für zwei interessierende Fälle angegeben und in Fig. 1 graphisch dargestellt:

Fall a): $E_0=0$. Dieser Fall ist theoretisch interessant; er veranschaulicht, wie weit in der Zerfallsrate die Effekte der Bindung des Myons von der Anziehung der Zerfallselektronen durch den Kern kompensiert werden.

¹⁷ Vgl. dazu Ref.^{1,3,10,11} und MUTO, T., M. TANIFUJI, K. INOUE and T. INOUE: Progr. Theor. Phys. 8, 13 (1952).

Fall b): $E_0 = 11$ MeV. Dieser Fall ist für den Vergleich mit den bisherigen Experimenten, in denen nur Elektronen einer Energie $E > 10$ MeV gemessen wurden, zuständig.

Die in Fig. 1 mit *SM* bezeichnete Kurve wurde von GILINSKY und MATHEWS¹² mit Sommerfeld-Maue-Funktionen für das Elektron berechnet. Sie stimmt mit unseren Ergebnissen für mittlere Kernladungszahlen gut überein.

Im Prinzip müssen wir wegen unserer unrelativistischen Behandlung des Myons noch mit einem Fehler unserer Ergebnisse rechnen, dessen

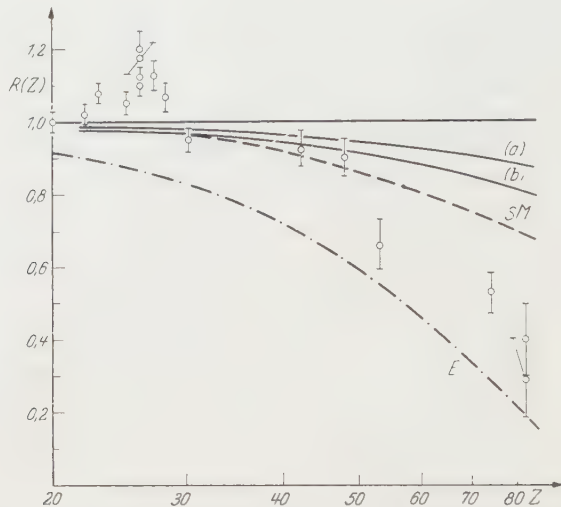


Fig. 1. Zerfallsraten $R(Z)$ negativer Myonen in der *K*-Schale von Atomen der Ladungszahl Z . Die einzelnen Kurven wurden mit verschiedenen Elektronen-Wellenfunktionen berechnet: (a) und (b) (vgl. Text) mit exakten Dirac-Funktionen, *SM* mit Sommerfeld-Maue-Funktionen, *E* mit ebenen Wellen

obere Grenze etwa durch das Verhältnis der kleinen zur großen Komponente der Myonwellenfunktion gegeben ist (in der Rechnung treten Interferenzterme auf). Der wirkliche Fehler sollte jedoch kleiner sein. Für $Z = 26$ haben GILINSKY und MATHEWS numerisch ermittelt, daß die Hinzunahme der kleinen Komponente eine Korrektur der Zerfallsrate um nur $\sim 3\%$ bewirkt. Ein quantitativer Vergleich des von ihnen berechneten Elektronenspektrums für $Z = 26$ mit unseren Ergebnissen zeigt tatsächlich gute Übereinstimmung. Unser Spektrum weist ein etwas schmäleres und höheres Maximum bei nahezu gleicher integraler Zerfallsrate auf.

Für hohe Werte von Z liegen unsere Raten jedoch merklich höher als die mit *SM*-Funktionen berechneten. Ein Teil dieser Abweichung sollte zu Lasten unserer unrelativistischen Näherung für das Myon gehen. Unsere Werte bleiben aber, auch wenn wir für $Z = 82$ den maximalen

Fehler von $\sim 15\%$ annehmen, oberhalb der *SM*-Werte. Das ist nicht verwunderlich, da die *SM*-Funktion die kleinen Drehimpulse zu schwach berücksichtigt und der Beitrag des Drehimpulses $j = 1/2$ der Elektronenwelle zur Zerfallsrate bei Blei rund 70% ausmacht (vgl. Fig. 3). Neben dem Fehler, der in unseren Ergebnissen die Vernachlässigung der relativistischen Anteile der Myonfunktion verursacht, spielen andere Fehler keine Rolle.

Unsicherheiten in der Bindungsenergie und der Wellenfunktion des Myons können maximal 1% Fehler bewirken. Auf die nicht mehr be-

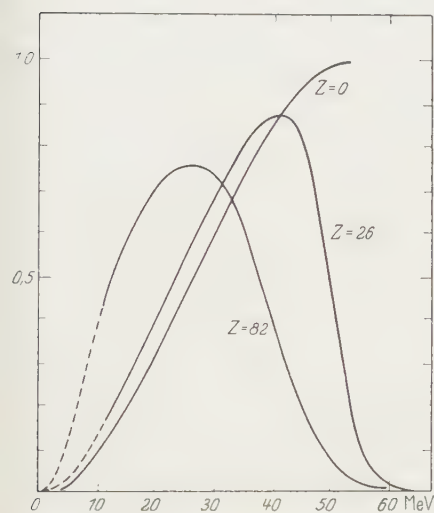


Fig. 2. Elektronenspektren des Zerfalls von Myonen in der *K*-Schale von Eisen ($Z=26$) und Blei ($Z=82$). Zum Vergleich ist das Spektrum des Zerfalls freier Myonen ($Z=0$) angegeben

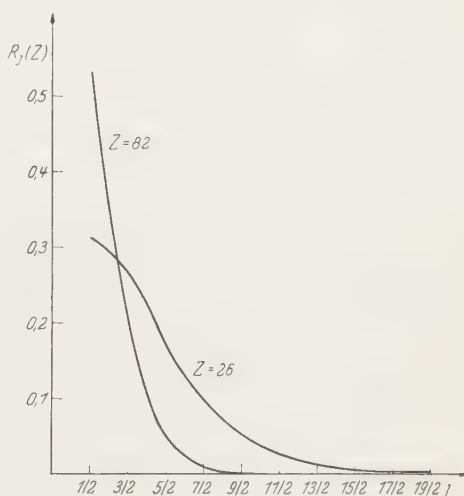


Fig. 3. Teilbeträge $R_j(Z)$ zur Zerfallsrate gebundener Myonen für die einzelnen Drehimpulse j des entstehenden Elektrons

rechneten höheren Werte der Elektronendrehimpulse haben wir durch Extrapolation korrigiert, was selbst im ungünstigsten Fall $Z=22$ nur 0,8% ausmacht. Für zwei Beispiele zeigt Fig. 3 den Beitrag der einzelnen Drehimpulse $j = |\kappa| - \frac{1}{2}$ zur Zerfallsrate der Myonen.

Da wir nur für Elektronenenergien $E > 11$ MeV gerechnet haben, erforderte die Ermittlung der Zerfallsraten im Fall a) eine graphische Extrapolation des berechneten Spektrums der Elektronen bis zur Energie 0. Hiervon kann für hohe Z ein Fehler bis $\sim 1\%$ entstehen, für niedrigere Z ist der Fehler vernachlässigbar. Der extrapolierte Teil der Spektren ist in Fig. 2 gestrichelt ergänzt.

Um die Bedeutung der Coulomb-Effekte auf das Elektron im Zerfall gebundener Myonen deutlich zu machen, haben wir in Fig. 1 zum

Vergleich eine mit E bezeichnete Kurve der Zerfallsraten, die nur die Effekte der Bindung des Myons enthält, mit eingezeichnet [nach Formel (1) mit $\eta = 8$].

§ 4. Diskussion

Unsere Rechnungen haben die früheren, unter gewissen Näherungen gewonnenen Ergebnisse für die Myon-Zerfallsraten aus der K -Schale bestätigt und insbesondere eine relativ gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen von GILINSKY und MATHEWS¹² für den gesamten Bereich der Atomladungszahlen Z ergeben.

Die einzige wesentliche Vernachlässigung in unseren Rechnungen besteht in der unrelativistischen Behandlung des Myons. Sie ist für mittlere Z unbedeutend, könnte aber für höhere Z eine merkliche Korrektur unserer Werte (bis zu 15 %) bewirken. Wir können mit Gewißheit den Schluß bestätigen, daß die Diskrepanz zwischen Experiment und Theorie für den Bereich $20 < Z < 30$ unaufhebbar ist, mithin entweder in der Theorie nicht berücksichtigte, noch unbekannte Wechselwirkungen des Myons existieren, oder aber die Experimente Fehler enthalten müssen.

Der gleiche Schluß ist nun auch für $Z > 50$ von der theoretischen Seite her gut gesichert. Denn auch unter der Annahme eines maximalen Fehlers von 15 % für $Z = 82$ liegt die theoretische Kurve weit außerhalb der experimentellen Fehlergrenzen.

Neuerdings wurde für $Z = 26$ experimentell eine Myonzerfallsrate $R(Z) < 1$ im Einklang mit der Theorie gefunden¹⁸.

Die Entscheidung darüber, auf welche Weise die Diskrepanz von Theorie und Experiment erklärt werden muß, ist noch offen. Weitere Messungen, möglichst auch der Elektronenspektren, sind zur Klärung des Problems notwendig und vor allem auch für $Z > 50$ sehr wünschenswert.

Wir danken den Herren J. H. D. JENSEN und B. STECH für die Anregung zu dieser Arbeit und wertvolle Diskussionen, Herrn V. L. TELEGDI für anregende Diskussionen, den Herren V. GILINSKY und J. MATHEWS für einen Vorabdruck ihrer Arbeit und briefliche Erläuterungen, den Herren G. CULLIGAN, D. HARTING, N. H. LIPMAN für eine Diskussion und die Mitteilung experimenteller Ergebnisse vor der Publikation, und den Herren K. W. FORD und J. G. WILLS für die Überlassung von Myon-Wellenfunktionen. Dem Rechenzentrum der Universität Tübingen sind wir für die Ermöglichung der numerischen Rechnungen am Rechner S 2002, dem Bundesministerium für Atomenergie und Wasserwirtschaft für finanzielle Unterstützung zu Dank verpflichtet.

Anhang

Im folgenden sind einige Formeln zusammengestellt, die zur Berechnung der Elektronenfunktionen verwendet wurden. Die Drehimpulsentwicklung der Elektronenwellenfunktion lautet:

$$\vec{\psi}_e(\vec{p}, s) = \sum_{\kappa \mu} a_{\kappa \mu}(\vec{p}, s) \vec{\Phi}_{\kappa}^{\mu}; \quad (\text{A } 1)$$

¹⁸ Private Mitteilung: CULLIGAN, G., D. HARTING u. N. H. LIPMAN.

dabei ist

$$\Phi_{\kappa}^{\mu} = \begin{pmatrix} g_{\kappa} \chi_{\kappa}^{\mu} \\ -i f_{\kappa} \chi_{-\kappa}^{\mu} \end{pmatrix} \quad \text{mit} \quad \chi_{\kappa}^{\mu} = \sum_{\tau} C(l(\kappa), \frac{1}{2}, j(\kappa); \mu - \tau, \tau) Y_{l(\kappa)}^{\mu - \tau} \varphi^{\tau}$$

Eigenfunktion zum Drehimpuls $j(\kappa) = |\kappa| - \frac{1}{2}$ und der Parität

$$(-)^{l(\kappa)} \quad \text{mit} \quad l(\kappa) = |\kappa| - \frac{1}{2}(1 - \text{sgn } \kappa).$$

Für die Radialfunktionen gelten die Differentialgleichungen:

$$\begin{aligned} \left(\frac{d}{dr} + \frac{\kappa + 1}{r} \right) g_{\kappa}(r) + (E + m - V(r)) f_{\kappa}(r) &= 0 \\ \left(\frac{d}{dr} - \frac{\kappa - 1}{r} \right) f_{\kappa}(r) - (E - m - V(r)) g_{\kappa}(r) &= 0. \end{aligned}$$

In dieser Arbeit wurde das Potential

$$V(r) = \begin{cases} \frac{Z\alpha}{2R} \left(\frac{r^2}{R^2} - 3 \right) & \text{für } r \leq R \\ -\frac{Z\alpha}{r} & \text{für } r \geq R \end{cases}$$

benutzt. Dann ist

$$g_{\kappa}(r) = \begin{cases} B_{\kappa} g_{\kappa}^{\text{I}}(r) & \text{für } r \leq R \\ A_{\kappa} (g_{\kappa}^{\text{reg}}(r) + D_{\kappa} g_{\kappa}^{\text{irr}}(r)) & \text{für } r \geq R \end{cases}$$

und analog für $f_{\kappa}(r)$. Dabei sind die regulären Coulomb-Funktionen $g_{\kappa}^{\text{reg}}, f_{\kappa}^{\text{reg}}$ mit der Normierung

$$g_{\kappa}(r) \rightarrow -j_{l(\kappa)}(pr), \quad f_{\kappa}(r) \rightarrow j_{l(-\kappa)}(pr) \quad \text{für } Z \rightarrow 0$$

gegeben durch

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} (g_{\kappa}^{\text{reg}} + i f_{\kappa}^{\text{reg}}) &= e^{\frac{\pi}{2} \lambda} \frac{|\Gamma(\gamma + i\lambda)|}{\Gamma(1 + 2\gamma)} (2pr)^{\gamma-1} e^{-ipr + i\gamma \text{reg}} \times \\ &\times (\gamma + i\lambda) F(1 + \gamma + i\lambda, 1 + 2\gamma; 2ipr) \end{aligned}$$

wobei gilt:

$$e^{2i\eta} = \frac{-\kappa + \frac{Z\alpha m}{p}}{\gamma + i\lambda}, \quad \lambda = \frac{Z\alpha E}{p}, \quad \gamma = \sqrt{\kappa^2 - Z^2 \alpha^2}.$$

Die irregulären Coulomb-Funktionen erhält man aus den regulären durch die Ersetzung $\gamma \rightarrow -\gamma$. Die Wellenfunktionen im Parabelpotential erhält man als rasch konvergierende Potenzreihen:

$$g_{\kappa}^{\text{I}} = \left(\frac{r}{R} \right)^{l(\kappa)} \sum_{n=0}^{\infty} g_{\kappa}^{(n)} \left(\frac{r}{R} \right)^{2n}, \quad f_{\kappa}^{\text{I}} = \left(\frac{r}{R} \right)^{l(-\kappa)} \sum_{n=0}^{\infty} f_{\kappa}^{(n)} \left(\frac{r}{R} \right)^{2n}.$$

Die $g_{\kappa}^{(n)}$ und $f_{\kappa}^{(n)}$ ergeben sich aus den Rekursionsformeln:

$$\left. \begin{aligned} (2n + 2\kappa + 1) g_{\kappa}^{(n)} &= - \left(ER + mR + \frac{3}{2} Z\alpha \right) f_{\kappa}^{(n)} + \frac{Z\alpha}{2} f_{\kappa}^{(n-1)} \\ 2n f_{\kappa}^{(n)} &= \left(ER - mR + \frac{3}{2} Z\alpha \right) g_{\kappa}^{(n-1)} - \frac{Z\alpha}{2} g_{\kappa}^{(n-2)} \end{aligned} \right\} \kappa > 0$$

$$f_{\kappa}^{(0)} = 1$$

$$\left. \begin{aligned} (2n - 2\kappa + 1) f_{\kappa}^{(n)} &= \left(ER - mR + \frac{3}{2} Z\alpha \right) g_{\kappa}^{(n)} + \frac{Z\alpha}{2} g_{\kappa}^{(n-1)} \\ 2n g_{\kappa}^{(n)} &= - \left(ER + mR + \frac{3}{2} Z\alpha \right) f_{\kappa}^{(n-1)} - \frac{Z\alpha}{2} f_{\kappa}^{(n-2)} \\ g_{\kappa}^{(0)} &= 1 \end{aligned} \right\} \kappa < 0$$

Der Koeffizient D_{κ} ergibt sich aus der Anschlußbedingung am Kernrand zu

$$D_{\kappa} = \frac{-g_{\kappa}^I g_{-\kappa}^{\text{reg}} + f_{\kappa}^I g_{\kappa}^{\text{reg}}}{-g_{\kappa}^I g_{-\kappa}^{\text{irr}} - f_{\kappa}^I g_{\kappa}^{\text{irr}}} \Big|_{r=R}.$$

A_{κ} und B_{κ} ergeben sich aus der Normierungsbedingung für die Radialfunktionen:

$$\int_0^{\infty} dr r^2 \{ g_{\kappa}(pr) g_{\kappa}(p'r) + f_{\kappa}(pr) f_{\kappa}(p'r) \} = \frac{\pi}{2p^2} \delta(p - p')$$

zu:

$$A_{\kappa} = [1 + \cos(\delta^{\text{reg}} - \delta^{\text{irr}}) D_{\kappa} + D_{\kappa}^2]^{-\frac{1}{2}}, \quad B_{\kappa} = A_{\kappa} \frac{g_{\kappa}^{\text{reg}} + D_{\kappa} g_{\kappa}^{\text{irr}}}{g_{\kappa}^I} \Big|_{r=R}$$

mit:

$$\delta^{\text{reg}} = \eta^{\text{reg}} - \frac{\pi}{2} \gamma - \arg \Gamma(\gamma + i\lambda), \quad \delta^{\text{irr}} = \eta^{\text{irr}} + \frac{\pi}{2} \gamma - \arg \Gamma(-\gamma + i\lambda).$$

Für genügend große Elektronenenergien kann $m=0$ gesetzt werden; dies gibt beträchtliche Vereinfachungen, die in dieser Arbeit durchweg benutzt wurden:

Es gelten dann die Beziehungen

$$f_{\kappa} = -\text{sgn } \kappa g_{-\kappa}, \quad A_{\kappa} = A_{-\kappa}, \quad B_{\kappa} = B_{-\kappa}, \quad D_{\kappa} = D_{-\kappa}.$$

Man hat also nur halb soviele Radialfunktionen und Anschlußkoeffizienten zu berechnen. Außerdem wird η und λ und damit alle vorkommenden Γ -Funktionen von der Energie unabhängig.

Es wird

$$\cos \eta = \sqrt{\frac{1}{2} \left(1 - \frac{\gamma}{\kappa} \right)} \quad \sin \eta = \sqrt{\frac{1}{2} \left(1 + \frac{\gamma}{\kappa} \right)} \quad \lambda = Z\alpha.$$

Die Koeffizienten $a_{\kappa\mu}(\vec{p}, s)$ in Gl. (A.1) ergeben sich aus der Randbedingung:

$$\psi_e(\vec{p}, s) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} \frac{u(\vec{p}, s)}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}} e^{i\vec{p} \cdot \vec{r} + i\lambda \ln pr} + \text{einlaufende Kugelwelle}$$

mit

$$u^+ u = 2E$$

zu

$$a_{\kappa\mu}(\vec{p}, s) = - \sqrt{\frac{2(\vec{E} + m)}{\pi}} e^{-i\delta_{\kappa}} i^{l(\kappa)} (\chi_{\kappa}^{\mu}(\vec{p}_0) \varphi^s) \quad (\varphi^s \text{ Pauli-Spinor})$$

δ_{κ} ist die Streuphase für das Potential $V(r)$, die aber bei unserer Rechnung herausfällt, da keine Interferenzterme zwischen den Drehimpulsen auftreten.

Aus dem II. Physikalischen Institut der Technischen Hochschule Stuttgart

Hat das M -Zentrum in KCL ein magnetisches Moment?

Von

H. GROSS

Mit 11 Figuren im Text

(Eingegangen am 20. April 1961)

Bestrahlt man F -Zentren in Alkalihalogeniden bei Zimmertemperatur mit Licht von der Wellenlänge ihrer Absorptionsbande, so wandeln sie sich in eine Reihe von Folgezentren um; das erste dieser Folgezentren ist das M -Zentrum. In der vorliegenden Arbeit wird gezeigt, daß dieses Störzentrum kein meßbares Elektronenspinresonanz-(ESR-)Signal liefert. Hierzu wurden drei voneinander unabhängige Meßmethoden angewendet: 1. Die aus ESR-Absorptionsmessungen bestimmbare Spindichte wurde mit der optisch gemessenen F -Zentren-Konzentration vor und nach der M -Umwandlung verglichen. 2. Kristalle mit ausgerichteten M -Zentren wurden auf eine Anisotropie ihrer ESR untersucht. 3. ESR-Dispersionssignale wurden bei verschiedenen Mikrowellenleistungen gemessen und analysiert. Keine dieser Messungen lieferte einen Anhaltspunkt für die Existenz einer ESR des M -Zentrums, so daß das M -Zentrum mit großer Wahrscheinlichkeit als diamagnetisch zu betrachten ist. Dieses Resultat spricht gegen das M -Zentren-Modell von SEITZ und KNOX; es läßt sich aber gut mit dem von VAN DOORN-HAVEN und PICK vorgeschlagenen Modell vereinbaren.

§ 1. Einleitung

Die beste Methode zur Ermittlung der atomistischen Struktur von Störstellen in Kristallen ist in vielen Fällen die Untersuchung ihres Elektronenspinresonanz-(ESR-)Spektrums.

Als Beispiel für die erfolgreiche Anwendung dieser Methode seien hier die Untersuchungen der Spinresonanz des F -Zentrums genannt. Die Resultate der Untersuchungen von FORM¹ und Sättigungsverhalten² der Resonanzkurven stehen im Einklang mit dem von DE BOER³ gegebenen Modell einer mit einem Elektron besetzten Anionenlücke. Die endgültige Bestätigung dieses Modells folgte schließlich aus den Doppelresonanzmessungen von FEHER⁴.

Wesentlich unsicherer liegen die Verhältnisse bei den Folgezentren des F -Zentrums, die aus diesem durch Lichteinstrahlung in die F -Bande bei mittleren Temperaturen entstehen und in der Reihenfolge ihres Auftretens mit M , R_1 , R_2 , N bezeichnet werden; zwar kennt man Form und

¹ KIP, A.F., C. KITTEL, R.A. LEVY and A.M. PORTIS: Phys. Rev. **91**, 1066 (1953).

² PORTIS, A.M.: Phys. Rev. **91**, 1072 (1953).

³ BOER, J.H. DE: Rec. Trav. Chim. Pays-Bas **56**, 301 (1937).

⁴ FEHER, G.: Phys. Rev. **105**, 1122 (1957).

Lage ihrer optischen Absorptionsbanden, doch ist ihre atomistische Struktur noch unsicher.

Das erste dieser Folgezentren, das M -Zentrum, wurde fast gleichzeitig von MOLNAR⁵ und PETROFF⁶ auf Grund seiner optischen Absorptionsbande gefunden und war seither Gegenstand verschiedener Modellbetrachtungen:

a) Als erstes Modell wurde von SEITZ⁷ ein Assoziat eines F -Zentrums mit einer Kationen-Anionen-Doppellücke vorgeschlagen (Fig. 1a). Ein solches Störzentrum müßte infolge seiner niedrigen Symmetrie (C_{2v}) ein permanentes elektrisches Dipolmoment besitzen und bei Anlegen eines starken elektrischen Feldes auf Grund des Stark-Effektes eine



Fig. 1 a—c. M -Zentren-Modelle. a Nach SEITZ; b nach KNOX; c nach VAN DOORN-HAVEN und PICK

deutliche Linienverbreiterung zeigen. Dieser Effekt konnte experimentell nicht beobachtet werden⁸.

b) KNOX⁹ entwickelte ein etwas abgeändertes Modell mit höherer Symmetrie (D_{2h}), bei dem diese Schwierigkeit entfällt. Danach assoziiert sich das Störstellenelektron mit dem benachbarten Kation zu einem neutralen Alkaliatom, dessen Ladungsverteilung durch die an die Störstelle angrenzenden Kationen in der angedeuteten Weise verzerrt wird (Fig. 1b).

c) Ein drittes Modell wurde von VAN DOORN und HAVEN¹⁰ und PICK¹¹ vorgeschlagen: danach ist das M -Zentrum ein Assoziat von zwei F -Zentren (Fig. 1c). Ein solches Zentrum besitzt eo ipso Inversionssymmetrie und ist in $[110]$ -Richtung orientiert.

Die Argumente, welche für dieses Modell sprechen, sind in der Arbeit von PICK¹¹ zusammengetragen, wobei die angeblich vorhandene paramagnetische Resonanz des M -Zentrums ausdrücklich ignoriert wird.

⁵ MOLNAR, I. P.: Thesis, Massachusetts Institute of Technology, 1940.

⁶ PETROFF, ST.: Z. Physik **127**, 443 (1950).

⁷ SEITZ, F.: Rev. Mod. Phys. **18**, 384 (1946); **26**, 7 (1954).

⁸ OVERHAUSER, A. W., and H. RÜCHHARDT: Phys. Rev. **112**, 722 (1958).

⁹ KNOX, R. S.: Phys. Rev. No 2, 87 (1959).

¹⁰ DOORN, C. Z. VAN, and Y. HAVEN: Philips Res. Rep. **11**, 479 (1956); **12**, 309 (1957).

¹¹ PICK, H.: Z. Physik **159**, 69 (1960).

Bei ESR-Messungen am M -Zentrum besteht die Schwierigkeit, daß M -Zentren im Kristall niemals für sich allein, sondern immer nur gleichzeitig mit F -Zentren auftreten. Bei gleichem oder ähnlichem g -Faktor ist daher mit einer zumindest teilweisen Überlappung der Resonanzkurven zu rechnen, so daß immer nur etwas indirekte Schlüsse möglich sind.

Bisher sind folgende ESR-Messungen am M -Zentrum bekannt:

1. Durch Lichteinstrahlung in die F -Bande von KCl bei Zimmertemperatur ändert sich die Form der ESR-Absorptionskurve: der Abstand zwischen den Stellen maximaler Steigung verringert sich um etwa 20% gegenüber der reinen F -Absorptionskurve. Setzt man die F -Absorption als bekannt voraus, so ergibt sich durch Differenzbildung eine zweite Signalkomponente. Sie wurde dem M -Zentrum zugeschrieben¹².

2. Das zweite Moment des Absorptionssignals von strahlungsverfärbten LiF-Kristallen ist eine Funktion des Konzentrationsverhältnisses von F - und M -Zentren¹³.

3. LiF-Kristalle, welche F - und M -Zentren nebeneinander enthalten, liefern unter den Bedingungen des schnellen Resonanzdurchgangs bei Dispersionseinstellung zwei ESR-Signale mit verschiedener Phasenlage und verschiedener Abhängigkeit von der eingestrahlten Mikrowellenleistung. HYDE¹⁴ schreibt eines dieser Signale dem F -Zentrum, das zweite dem M -Zentrum zu.

In unseren im folgenden beschriebenen eigenen Untersuchungen zur Frage der M -Zentren-Resonanz versuchten wir, die Unsicherheiten in der Deutung der ESR-Kurven, die sich aus der möglichen Überlagerung der ESR-Spektren von F - und M -Zentren ergeben, auf zweierlei Weise zu umgehen. Erstens wurden die ESR-Messungen stets an solchen Kristallen durchgeführt, deren optisches Absorptionsspektrum auf Grund parallellaufender optischer Messungen bekannt war. Auf diese Weise konnte jede Änderung im ESR-Spektrum sofort mit der entsprechenden Änderung der optischen Absorption verglichen werden. Zweitens wurden ESR-Messungen an ausgerichteten M -Zentren gemacht. Kristalle, bei denen M -Zentren bevorzugt in einer bestimmten $[110]$ -Richtung orientiert sind, zeigen nämlich einen starken Dichroismus der optischen Absorption; eine etwaige Spinresonanz der M -Zentren müßte dann ebenfalls anisotrop sein.

Unsere Untersuchungen ergaben:

1. Eine Spinresonanz des M -Zentrums konnte nicht festgestellt werden.

¹² KAWAMURA, H., and K. ISHIWATARI: J. Phys. Soc. Japan **13**, 38 (1958).

¹³ LORD, N. W.: Phys. Rev. **106**, 1100 (1957).

¹⁴ HYDE, J. S.: Phys. Rev. **119**, 1483 (1960).

2. Die früher¹² beobachtete Änderung der Form der ESR-Absorptionskurve tritt erst ein, wenn das Maximum der M -Konzentration im Kristall bereits überschritten ist. Eine Korrelation mit dem M -Zentrum besteht demnach nicht.

3. Die beiden phasenverschobenen Dispersionssignale, wie sie HYDE¹⁴ an LiF beobachtete, treten in KCl schon beim reinen F -Zentrum auf. Die theoretische Begründung für das gleichzeitige Auftreten von zwei Signalen bei ein und demselben Spinsystem wurde von WEGER¹⁵ gegeben.

Mit diesem Ergebnis sind die Modelle von SEITZ und KNOX nicht verträglich, da sie einen Paramagnetismus des M -Zentrums fordern. In dem Modell von VAN DOORN und HAVEN und von PICK ist dagegen ein Diamagnetismus gut verständlich.

§ 2. Experimentelle Methode

Das verwendete Kristallmaterial war aus der Schmelze gezogen und wurde unter Vakuum zu zwei verschiedenen Konzentrationen additiv verfärbt. Zur Erzeugung reiner F -Zentren wurden die verfärbten Kristalle auf 700° C erhitzt und dann bei Lichtabschluß auf Zimmertemperatur abgeschreckt. Die gemessenen Kristallplättchen hatten die ungefähren Abmessungen $9 \times 12 \times 0,2$ mm.

Für die optischen Messungen verwendeten wir ein Zeiß-Spektralphotometer M 4 Q II S, für die Umwandlungen eine Hg-Höchstdrucklampe HBO 200 und eine Schott-Filterkombination BG 18/BG 20/OG 1 zur Ausfilterung der Spektrallinie $\lambda = 5460$ Å. Die Temperaturen lagen bei den Messungen im allgemeinen bei -190° C. Die Einstrahlungsdauer wurde bei den Umwandlungen so gewählt, daß die jeweils höheren Folgezentren (bei M -Umwandlung also z. B. R_1 , R_2) gerade noch nicht in merklicher Konzentration auftraten.

Die ESR-Messungen wurden mit dem Spektrometer der Firma Varian Assoc. durchgeführt. Das Gerät arbeitet im X-Band mit einem Klystron V.A. 6315 der Ausgangsleistung 200 mW und mit niederfrequenter Modulation des H_0 -Feldes. Das gemessene Signal wird differentiell abgetastet und über einen phasenempfindlichen mechanischen Gleichrichter auf einen Kompensationsschreiber gegeben. Die in den Hohlraumresonator gelangende HF-Leistung kann durch zwei geeichte Dämpfungsglieder bis zu einer Größe von 60 db meßbar verkleinert werden. Wir verwendeten einen Hohlraumresonator der Güte $Q = 6000$ für die TE_{012} -Eigenschwingung, in welchem die Probe auf einem 0,5 mm starken Quarzplättchen an die Stelle des maximalen H -Feldes gebracht werden konnte. Die Niederfrequenz-Modulation des H_0 -Feldes geschah

¹⁵ WEGER, M.: Bell Syst. Techn. J. **39**, 1013 (1960).

wahlweise durch zwei fest mit dem Resonator verbundene oder zwei auf die Polschuhe des Elektromagneten aufgesetzte Helmholtz-Spulen.

Die ESR-Messungen erfolgten bei Zimmertemperatur. Das Einbringen der Kristalle in den Hohlraumresonator geschah ebenso wie die Messung selbst unter Lichtabschluß. Da die ESR-Messungen in unserem Fall wesentlich weniger empfindlich sind als die optischen Absorptionsmessungen, wurden sie zur Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses nicht an den einzelnen Kristallplättchen vorgenommen, sondern an Paketen von vier oder fünf derselben, von denen der Durchschnitt der optischen Absorption gebildet wurde. Bei den Anisotropiemessungen an ausgerichteten M -Zentren wurden die Kristalle durch eine Schablone aus Styrofoam so gehalten, daß jede der beiden in der Kristallfläche liegenden, aufeinander senkrechten $[110]$ -Richtungen parallel zu den H_0 -Feldlinien orientiert werden konnte.

§ 3. Optische und magnetische Parallelmessungen

In den ersten Versuchsreihen verfolgten wir systematisch die Änderung des ESR-Signals bei fortschreitender Umwandlung der anfänglich

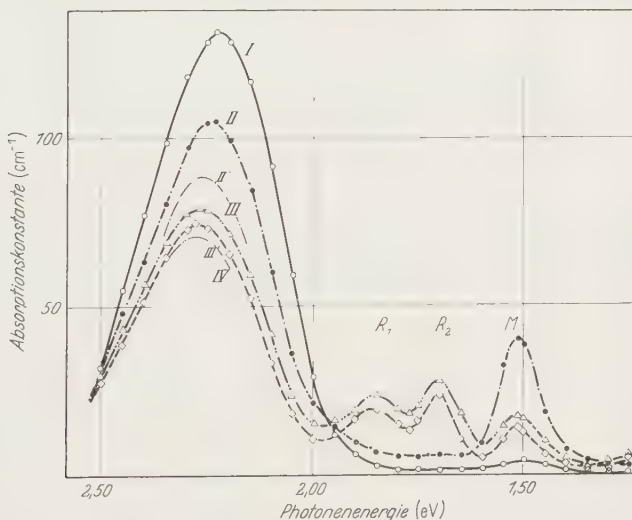


Fig. 2. Optisches Absorptionsspektrum eines additiv verfärbten KCl-Kristalls bei -40°C . I: Frisch abgeschreckt; II: Nach etwa 30 min Belichtung mit der Hg-Linie 5460 \AA bei Zimmertemperatur; III: nach weiteren 90 min Belichtung; IV: nach weiteren etwa 10 Std Belichtung. Die Kurven II' und III' entstehen aus den Kurven II und III durch Subtraktion der der F -Absorption überlagerten Komponente M_F der M -Zentren-Absorption

reinen F -Zentren bis zum maximal erreichbaren Umwandlungsgrad. Die Ergebnisse dieser Versuchsreihen sind in Fig. 2 bis Fig. 5 wiedergegeben.

Die optischen Messungen erfolgten bei -40°C und zeigen:

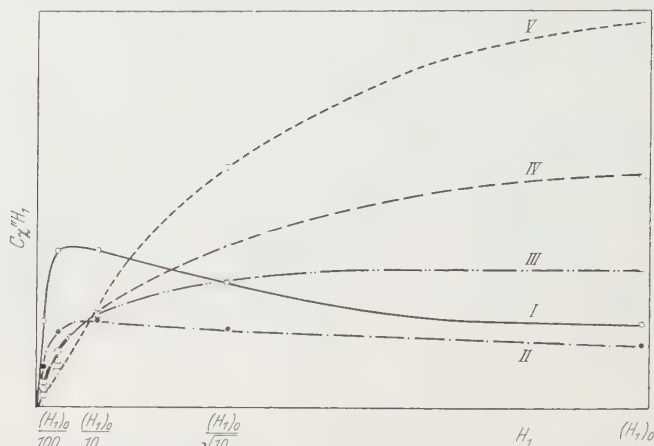


Fig. 3. Signalthöhe der ESR-Absorption des KCl-Kristalls von Fig. 2 als Funktion der Mikrowellenfeldstärke H_1 . $(H_1)_0$ entspricht einer Mikrowellenleistung von etwa 100 mW. Kurven I bis IV wie in Fig. 2; Kurve V: nach weiteren 2 Std Bestrahlung mit dem Kontinuum einer Glühlampe bei etwa 35°C . Messung bei Zimmertemperatur

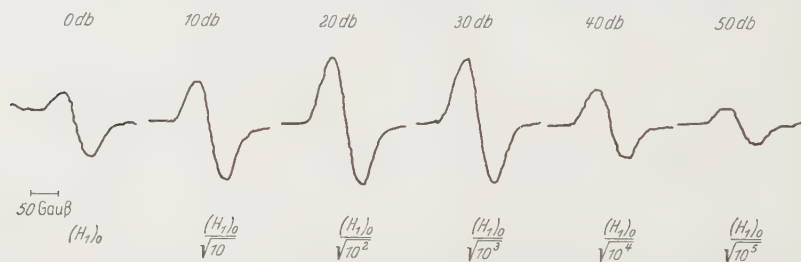


Fig. 4. ESR-Signale von Stufe I bei verschiedenen Mikrowellenleistungen. Verstärkungsfaktoren: 0 db bis 40 db V_0 ; 50 db: $2 V_0$



Fig. 5. ESR-Signale von Stufe IV bei verschiedenen Mikrowellenleistungen. Verstärkungsfaktoren: 0 db bis 20 db: V_0 ; 30 db bis 40 db: $4 V_0$; 50 db: $8 V_0$

Stufe I enthält praktisch ausschließlich F -Zentren. Ihre Konzentration ergibt sich nach SMAKULA¹⁶ aus der Absorptionskonstanten im

¹⁶ SMAKULA, A.: Z. Physik **59**, 603 (1930).

Bandenmaximum und der Halbwertsbreite zu

$$n_F = 6,24 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}.$$

Stufe II entsteht durch teilweise optische Umwandlung der F -Zentren zu M -Zentren bei 0° C . Die F -Zentren-Konzentration geht dabei etwa auf $\frac{2}{3}$ ihrer ursprünglichen Höhe zurück. (Bei der Konzentrationsberechnung nach SMAKULA wurde berücksichtigt, daß das Absorptionsspektrum des M -Zentrums noch eine zweite Komponente an der Stelle der F -Bande besitzt^{17,18}; die F -Bande wurde entsprechend korrigiert.)

Stufe III: Die optische Umwandlung wird fortgesetzt bis zur Bildung von R_1 - und R_2 -Zentren. Die F -Bande wird dabei noch einmal um einen Faktor $\frac{5}{6}$, die M -Bande um einen Faktor $\frac{1}{2}$ abgebaut.

Stufe IV: Die Fortsetzung der Umwandlung bei Zimmertemperatur führt zu keiner merklichen Veränderung des Absorptionsspektrums. Dagegen werden durch zweistündige Bestrahlung mit dem kontinuierlichen Licht einer Wolframlampe bei etwas höherer Temperatur ($\sim 35^\circ \text{ C}$) in der Hauptsache weitere N -Zentren gebildet (Umwandlungsstufe V; das optische Absorptionsspektrum ist hier nicht abgebildet).

Bei den ESR-Messungen fällt die starke Abhängigkeit des Sättigungsverhaltens und der Kurvenform vom Umwandlungsgrad auf. Im einzelnen entnimmt man den Meßkurven:

Stufe I liefert eine rein gaußförmige Absorptionskurve. Der Abstand zwischen den Punkten größter Steigung beträgt (48 ± 2) Gauß; das entspricht einer Halbwertsbreite

$$\Delta H = (55 \pm 2) \text{ Gauß}$$

und steht im Einklang mit früheren theoretischen und experimentellen Ergebnissen^{1,2}. Die Sättigungskurve erreicht ein Maximum bei einem H_1 -Feld von etwa $0,02$ Gauß und fällt bei größeren H_1 -Feldern wieder langsam ab.

Stufe II zeigt gegenüber Stufe I keine Änderung von Kurvenform und Sättigungsverhalten; dagegen verringert sich die Höhe des Absorptionssignals ungefähr entsprechend der kleineren F -Zentren-Konzentration.

Stufe III: Hier beginnt sich das Sättigungsverhalten zu ändern: bei Dämpfungen unterhalb 10 db ist die Höhe des Absorptionssignals nahezu unabhängig von H_1 ; bei sehr kleinen H_1 -Feldstärken, d.h. außerhalb der Sättigung, ist die Signalthöhe im Vergleich mit den entsprechenden Werten von Stufe I und Stufe II weiter herabgesetzt. Der Verlauf der Sättigungskurve gleicht dem von PORTIS² für reine F -Zentren angegebenen. — Die Absorptionskurven zeigen bei den stärksten H_1 -Feldern

¹⁷ DOORN, C. Z. VAN, and Y. HAVEN: Phys. Rev. **100**, 753 (1955).

¹⁸ LÜTY, F.: Z. Physik (im Druck).

beginnende Abweichungen von der Gauß-Form. Der Abstand zwischen den Punkten maximaler Steigung verringert sich um etwa 10%.

Stufe IV: Bei weiterer Änderung von Sättigungsverhalten und Kurvenform wird der voll gesättigte Zustand nicht mehr erreicht.

Stufe V: Der ungesättigte Bereich reicht bis zu den stärksten H_1 -Feldern. Die Abweichungen der Absorptionskurve von der Gauß-Form sind deutlich zu erkennen (Fig. 6). Der Abstand zwischen den Punkten maximaler Steigung hat sich gegenüber Stufe I und Stufe II um etwa 6 bis 7 Gauß verkleinert.

Für die Deutung der Änderung von Kurvenform und Sättigungsverhalten gibt es zwei Möglichkeiten: entweder handelt es sich dabei

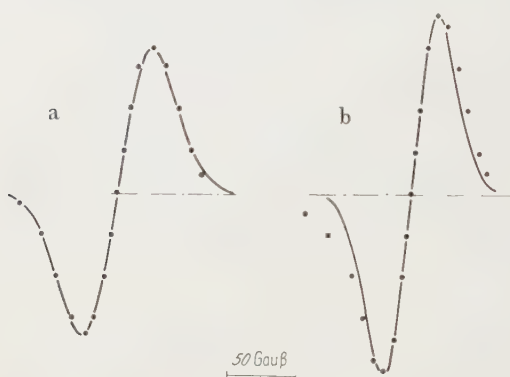


Fig. 6. Vergleich der Kurvenformen der ESR-Absorptionskurven in Stufe I (a) und Stufe V (b). Die Punkte liegen jeweils auf der gemessenen Absorptionskurve, die durchgezogene Linie ist die Gauß-Kurve gleicher Höhe und Halbwertsbreite

um eine Überlagerung von zwei einzelnen gaußförmigen ESR-Signalen, die vom F -Zentrum und einem seiner Folgezentren herrühren, oder man hat es nach wie vor mit der Spinresonanz des F -Zentrums allein zu tun, die aber nun wegen der Anwesenheit weiterer Gitterstörungen verändert ist. Bei der ersten Deutung muß auf Grund des Sättigungsverhaltens angenommen werden, daß die

Relaxationszeit des beteiligten Folgezentrums um ein bis zwei Größenordnungen kürzer ist als die des F -Zentrums. Für diese Deutung, die zuerst von KAWAMURA und ISHIWATARI¹² gegeben wurde, spricht die Tatsache, daß die Abweichungen von der Gauß-Form mit der Stärke des H_1 -Feldes zunehmen. Jedoch ist ein Zusammenhang der ESR-Änderung mit der Bildung von M -Zentren nach unseren Messungen nicht vorhanden. Die Frage nach einer etwaigen Korrelation mit dem Aufbau anderer Folgezentren (R_1 , R_2 , N) bedarf noch einer gesonderten Untersuchung.

Aus dem Verlauf der Sättigungskurven kann der Sättigungsfaktor

$$S = \frac{1}{\sqrt{1 + \gamma^2 H_1^2 T_1 T_2}}$$

und damit die mittlere Relaxationszeit $\sqrt{T_1 T_2}$ berechnet werden².

Die Werte in Tabelle 1 sind durch schematische Berechnung des aus Fig. 3 entnommenen Sättigungsfaktors entstanden, wobei es fraglich ist, ob für Stufe IV und V die Angabe von $\sqrt{T_1 T_2}$ noch sinnvoll ist.

Tabelle 1. Änderung der mittleren Relaxationszeit $\sqrt{T_1 T_2}$ bei von Stufe I—V fortschreitendem Umwandlungsgrad: vgl. Fig. 3. Fehlergrenzen $\pm 10\%$. Bei den Stufen IV und V ist der erste Wert jeweils an der Stelle $H_1/10$ berechnet, der zweite an der Stelle H_1

	Stufe I	Stufe II	Stufe III	Stufe IV	Stufe V
$\sqrt{T_1 T_2}$	$8,1 \cdot 10^{-6}$ sec	$8,1 \cdot 10^{-6}$ sec	$2,0 \cdot 10^{-6}$ sec	$1,5 \cdot 10^{-6}$ sec $1,1 \cdot 10^{-6}$ sec	$5,4 \cdot 10^{-7}$ sec $5,0 \cdot 10^{-7}$ sec

Der Wert von $\sqrt{T_1 T_2}$ stimmt in Stufe I und Stufe II mit dem von PORTIS¹⁹ für F -Zentren in KCl angegebenen Wert überein. Um hieraus die Größe von T_1 und T_2 selbst berechnen zu können, bedarf es noch einer zusätzlichen Annahme über den Mechanismus der ESR von Farbzentren. Man geht von der Vorstellung aus, daß das Spinsystem keine einheitliche Larmor-Frequenz ω_L besitzt: da das Magnetfeld am Ort des Elektrons wegen der verschiedenen Einstellmöglichkeiten der Kernspins im äußeren H_0 -Feld verschiedene Werte annehmen kann, bildet sich eine statistische Verteilung für die ω_L um den Mittelwert ω_0 aus. Spin-Spin-Wechselwirkung kann nur zwischen Spins mit gleichem ω_L stattfinden; diese werden jeweils zu einem Spinpaket zusammengefaßt und geben Anlaß zu einer Lorentz-förmigen ESR-Absorptionskurve der Breite $\Delta\omega_L$. Die Gesamtabsorptionskurve mit der Breite $\Delta\omega_G$ entsteht demnach als nichtaufgelöste Hyperfeinstruktur aus der Überlagerung der Lorentz-Absorptionskurven sämtlicher voneinander unabhängiger Spinpakete. Man spricht daher von inhomogener Verbreiterung, im Gegensatz zur homogenen Verbreiterung bei Spinsystemen mit einheitlicher Larmor-Frequenz ω_L . Der Verlauf der Sättigungskurven gibt Aufschluß über das Verhältnis der Halbwertsbreiten $\Delta\omega_L/\Delta\omega_G = a$ (CASTNER²⁰). Wegen

$$T_2 = \frac{1}{\Delta\omega_L}$$

kann man daraus T_2 berechnen.

Nach diesem Verfahren erhält man aus Fig. 3, Kurve I, die Werte $\Delta H_L = 0,3$ Gauß, $T_2 = 1,1 \cdot 10^{-7}$ sec, und daraus $T_1 = 5,9 \cdot 10^{-4}$ sec. Diese Werte erscheinen allerdings fragwürdig, da nach PORTIS¹⁹ für F -Zentren $T_1 = T_2$ zu erwarten ist. Möglicherweise wird das Ergebnis dadurch verfälscht, daß im Bereich der Sättigung unter den Bedingungen des schnellen Resonanzdurchgangs gewisse Spinpakete kein Absorptionssignal liefern¹⁵, wodurch sich auch das Abfallen der Sättigungskurve gegen große H_1 -Werte erklären würde.

¹⁹ PORTIS, A. M.: Phys. Rev. **104**, 584 (1956).

²⁰ CASTNER, T. G.: Phys. Rev. **115**, 1506 (1959).

§ 4. Messung der Spindichte

Eine eindeutige Zuordnung der gemessenen ESR-Absorptionssignale zu einem bestimmten Störstellentyp erfordert einen quantitativen Vergleich zwischen der optisch gemessenen Zentrenzahl N_{opt} und der aus den ESR-Signalen zu entnehmenden Zahl N_{ESR} der beteiligten Spins. Der Zusammenhang zwischen N_{ESR} und einem vom Spektrometer gemessenen Absorptionssignal $\chi'' H_1$ ist gegeben durch²¹

$$N_{\text{ESR}} = \frac{8 k T}{g^2 \cdot \mu_B^2} \cdot \frac{\frac{1}{2} \omega \chi'' H_1^2}{\pi H_1^2 \omega \omega_0 g (\omega - \omega_0)} = \frac{8 k T}{g^2 \cdot \mu_B^2 \cdot \pi H_1^2 \omega_0 g (\omega - \omega_0)} \cdot \int \chi'' H_1 dH_1.$$

(χ'' = Imaginärteil der komplexen Suszeptibilität; μ_B = Bohrsches Magneton; $g(\omega - \omega_0)$ = Linienform der Absorptionskurve.) Die unter der Spinabsorptionskurve liegende Fläche ist dann ein eindeutiges Maß für die Zahl der an dem Absorptionsprozeß beteiligten Spins. Daraus ergibt sich schließlich die Spindichte, wenn man durch das Probenvolumen dividiert. Die Größe des Proportionalitätsfaktors ermittelten wir experimentell durch eine unter gleichen Versuchsbedingungen vorgenommene Vergleichsmessung an pulverisiertem Kupfersulfat $\text{CuSO}_4 \cdot 5 \text{H}_2\text{O}$ mit einer bekannten Zahl von absorbierenden Spins.

Es ist zweckmäßig, quantitative Messungen außerhalb des Sättigungsbereichs der F -Resonanz durchzuführen, also bei H_1 -Feldern unter 0,02 Gauß bzw. Dämpfungen über 30 db. Wir untersuchten Kristalle mit zwei verschiedenen F -Zentren-Konzentrationen. Das Probenvolumen betrug jeweils $(0,23 \pm 0,02) \text{ cm}^3$. Vergleicht man die aus den ESR-Signalen berechneten Werte der Spindichte n_{ESR} mit den zugehörigen Werten n_F der F -Zentren-Konzentration vor und nach der teilweisen M -Umwandlung, so findet man

Tabelle 2. Vergleich der Dichte n_{ESR} der absorbierenden Spins mit der Konzentration n_F der F -Zentren vor (I) und nach (II) der M -Umwandlung. Fehlergrenzen $\pm 10\%$

	n_{ESR}	n_F
I	$2,31 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$	$2,1 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$
II	$1,18 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$	$1,34 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$

Es fällt auf, daß die Dichte der absorbierenden Spins nach der M -Umwandlung etwas stärker zurückgegangen ist als die Konzentration der F -Zentren. Die Abweichungen liegen an der Grenze des Bereichs der Meßfehler. Immerhin kann man mit Sicherheit feststellen, daß auch nach der M -Umwandlung in n_{ESR} kein M -Anteil enthalten ist.

²¹ INGRAM, D. J. E.: Free Radicals. London 1958.

§ 5. Dispersionsmessungen

Der Dispersionsanteil der ESR ist proportional zum Realteil χ' der komplexen Suszeptibilität. Bei inhomogenen verbreiterten Resonanzlinien zeichnet sich χ' dadurch aus, daß es auch bei großer HF-Leistung unabhängig von H_1 bleibt (PORTIS²), so daß das gemessene Dispersions-signal $\chi' H_1$ keinerlei Sättigungserscheinungen zeigt. Es ist daher für das Studium der ESR von Systemen mit langen Relaxationszeiten besonders aufschlußreich und wurde schon mehrmals zu Untersuchungen der F - und M -Zentren-Resonanz herangezogen (PORTIS²², HYDE¹⁵).



Fig. 7. ESR-Dispersionskurven von F -Zentren in KCl (Stufe I) bei verschiedenen Mikrowellenleistungen; a) in Phase mit dem Modulationsfeld $H_m \cos \omega_m t$; b) 90° phasenverschoben gegen das Modulationsfeld. $n_F = 2,7 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Verstärkungsfaktoren: a) 20 db: V_0 ; 30 db: $3 V_0$; 40 db: $9 V_0$. b) 20 db: $\frac{1}{2} V_0$; 30 db: $2 V_0$; 40 db: $8 V_0$

Die von uns durchgeführten Dispersionsmessungen an KCl ergaben folgendes (Fig. 7, Fig. 8):

1. Bei reinen F -Zentren treten ein mit dem Modulationsfeld $H_m \cos \omega_m t$ phasengleiches Signal von der Form der differenzierten Dispersionskurve und ein um 90° phasenverschobenes gaußförmiges Signal nebeneinander auf. Das Intensitätsverhältnis der beiden Signale ist eine Funktion der H_1 -Feldstärke (bei konstantgehaltenem H_m und ω_m) und verschiebt sich mit wachsender Dämpfung zugunsten des phasengleichen Signals.

2. Bei teilweiser Umwandlung in M -Zentren geht die F -Zentrenkonzentration um den Faktor $\frac{5}{8}$ zurück. Dabei ergeben sich folgende relative Änderungen von Höhe und Intensitätsverhältnis der beiden ESR-Signalkomponenten (Tabelle 3):

²² PORTIS, A.M.: Phys. Rev. **100**, 1219 (1955).

Der durchschnittliche Intensitätsverlust stimmt mit dem Rückgang der F -Zentren-Konzentration überein.

Dieses Ergebnis läßt sich durch eine Betrachtung des Meßverfahrens verstehen:

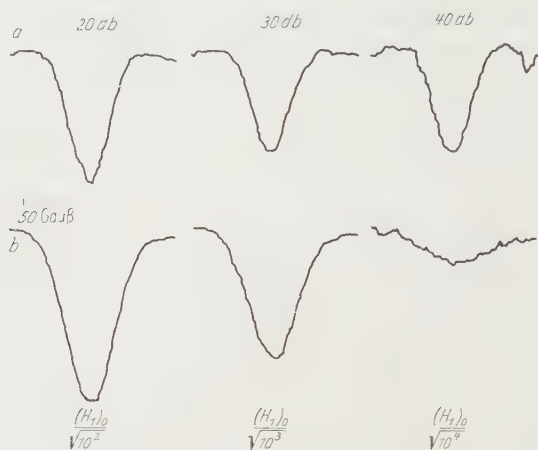


Fig. 8. ESR-Dispersionskurven nach M -Umwandlung (Stufe II) bei verschiedenen Mikrowellenleistungen. a) In Phase mit dem Modulationsfeld $H_m \cos \omega_m t$; b) 90° phasenverschoben gegen das Modulationsfeld. $n_F = 1,7 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Verstärkungsfaktoren: a) 20 db: $2 V_0$; 30 db: $5 V_0$; 40 db: $20 V_0$. b) 20 db: V_0 ; 30 db: $4 V_0$; 40 db: $20 V_0$.

Das Verhalten von ESR-Kurven in Absorption und Dispersion unter allen möglichen experimentellen Bedingungen folgt im Prinzip aus der Theorie der Kerninduktion von BLOCH²³. Die spezielle Anwendung der

Tabelle 3. Relative Änderungen von Höhe und Intensitätsverhältnis der 0° - und der 90° -Komponente des ESR-Dispersionssignals bei F - M -Umwandlung

	20 db			30 db			40 db		
	$A(0^\circ)$	$A(90^\circ)$	$\frac{A(0^\circ)}{A(90^\circ)}$	$A(0^\circ)$	$A(90^\circ)$	$\frac{A(0^\circ)}{A(90^\circ)}$	$A(0^\circ)$	$A(90^\circ)$	$\frac{A(0^\circ)}{A(90^\circ)}$
I	4,4	7,6	0,6	1,0	1,5	0,65	0,22	0,08	2,8
II	2,2	5,5	0,4	0,65	1,0	0,65	0,17	0,05	3,4
II/I	0,5	0,7		0,65	0,65		0,8	0,7	

Rechnungen von BLOCH auf die ESR wurde von PORTIS²⁴ und WEGER¹⁵ gegeben. Danach hängt die Gestalt der ESR-Signale zunächst davon ab,

²³ BLOCH, F.: Phys. Rev. **70**, 460 (1946).

²⁴ PORTIS, A.M.: Tech. Note No. 1, Sarah Mellon Scaife Radiation Laboratory, University of Pittsburgh, 1959.

ob man sich innerhalb oder außerhalb des Bereichs der Sättigung befindet. Die Grenzbedingung hierfür lautet

$$\gamma H_1 \cdot \sqrt{T_1 T_2} \begin{cases} < 1 & \text{ungesättigt} \\ > 1 & \text{gesättigt.} \end{cases}$$

a) Außerhalb der Sättigung findet man bei unseren Versuchsbedingungen keine Anomalien der ESR-Signale; insbesondere tritt nur das normale Dispersionssignal in Phase mit dem Modulationsfeld $H_m \cos \omega_m t$ auf. Bei Verwendung eines phasenempfindlichen Gleichrichters hat das Signal die Gestalt der differenzierten Dispersionskurve. Dieser Fall ist bei uns oberhalb von etwa 40 db Dämpfung verwirklicht (s. Fig. 3).

b) Im Sättigungsbereich sind die Verhältnisse weniger einfach; denn anders als im ungesättigten Fall spielt hier die Geschwindigkeit des Resonanzdurchgangs eine ausschlaggebende Rolle: Bei langsamem Resonanzdurchgang erhält man ESR-Signale von derselben Form wie unter a), also insbesondere ein normales, mit dem Modulationsfeld $H_m \cos \omega_m t$ phasengleiches Dispersionssignal (Fall 1 nach WEGER¹⁵). Bei schnellem adiabatischem Resonanzdurchgang dagegen ergibt sich ein gegen das Modulationsfeld um 90° phasenverschobenes Dispersionssignal von der Form der undifferenzierten Absorptionskurve (Fall 2 nach WEGER).

Eine weitere Komplikation tritt noch ein, wenn die Bedingung der Adiabasie

$$\gamma H_1^2 \gg \frac{dH}{dt}$$

nicht mehr überall streng erfüllt ist. Dies ist im allgemeinen dann der Fall, wenn dem monoton zu- oder abnehmenden H_0 -Feld eine sinusförmige Feldmodulation $H_m \cos \omega_m t$ überlagert ist:

$$H = H_0 + H_m \cos \omega_m t$$

$$\frac{dH}{dt} = \frac{dH_0}{dt} - \omega_m H_m \sin \omega_m t.$$

Dann ist also dH/dt nicht mehr konstant. Es kann der Fall eintreten, daß die Adiabasie-Bedingung nur für einen Teil des Modulationszyklus erfüllt ist. Man kann dann den Modulationszyklus nach WEGER¹⁵ in verschiedene Regionen einteilen (Fall 3 nach WEGER):

Region I:

$$\frac{H_1}{dH/dt} > \sqrt{T_1 T_2}.$$

Langsamer adiabatischer Resonanzdurchgang. Kurvenform: Differenzierte Dispersionskurve, in Phase mit der Modulationsfrequenz.

Region II:

$$\frac{1}{\gamma H_1} < \frac{H_1}{dH/dt} < \sqrt{T_1 T_2}.$$

Schneller adiabatischer Resonanzdurchgang. Kurvenform: Undifferenzierte Absorptionskurve, Phasenverschiebung 90° gegen Modulationsfrequenz.

Region III:

$$\frac{1}{\gamma H_1} > \frac{H_1}{dH/dt}.$$

Schneller nichtadiabatischer Resonanzdurchgang. Kurvenform: Differenzierte Dispersionskurve, in Phase mit der Modulationsfrequenz.

Die relative Länge dieser Regionen bestimmt das Intensitätsverhältnis der zugehörigen Signalkomponenten.

Bei unseren Versuchen verwendeten wir Kristalle der F -Zentren-Konzentration $n_F = 2,1 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. In der folgenden Tabelle geben wir die bei unseren Messungen erreichten Zahlenwerte der in den Grenzbedingungen für die drei Regionen vorkommenden charakteristischen Größen an:

Tabelle 4. Grenzwerte für die Zeitdauer des Resonanzdurchgangs durch ein einzelnes Spinpaket in Abhängigkeit von der Dämpfung. Min.: Zeitdauer bei schnellster Änderung des Modulationsfeldes; Max.: Zeitdauer bei langsamster Änderung des Modulationsfeldes

$\omega_m = 2\pi 400 \text{ sec}^{-1}$; $H_m = 3 \text{ Gauß}$; $\sqrt{T_1 T_2} = 8,1 \cdot 10^{-6} \text{ sec}$				
		20 db $H_1 = 0,02 \text{ G}$	30 db $H_1 = 0,006 \text{ G}$	40 db $H_1 = 0,002 \text{ G}$
$\frac{H_1}{dH/dt}$	Min.	$1,6 \cdot 10^{-6} \text{ sec}$	$4,8 \cdot 10^{-7} \text{ sec}$	$1,6 \cdot 10^{-7} \text{ sec}$
	Max.	$9,5 \cdot 10^{-2} \text{ sec}$	$2,9 \cdot 10^{-2} \text{ sec}$	$9,5 \cdot 10^{-3} \text{ sec}$
$\frac{1}{\gamma H_1}$		$2,8 \cdot 10^{-6} \text{ sec}$	$9,5 \cdot 10^{-6} \text{ sec}$	$2,8 \cdot 10^{-5} \text{ sec}$

Mit diesen Werten lassen sich die Grenzbedingungen für alle drei Regionen erfüllen. Damit ergibt sich die Möglichkeit, die beiden Signalkomponenten in Fig. 7 und Fig. 8 als Resonanzen des F -Zentrums unter verschiedenen experimentellen Bedingungen zu deuten: die 0° -Komponente rührt von den Regionen I und III des Modulationszyklus her, die 90° -Komponente von Region II. Mit zunehmender Dämpfung verlagert

sich der Hauptanteil des Modulationszyklus von Region II nach Region III, entsprechend geht die relative Intensität der 90° -Komponente zurück. Bei 40 db, wo man sich bereits außerhalb des Sättigungsbereichs befindet, verschwinden auch die Anomalien in der ESR.

Eine spezielle Resonanzlinie des M -Zentrums konnte auch bei Dispersionseinstellung nicht festgestellt werden.

§ 6. Frage nach der Anisotropie

Die optischen Übergangsmomente von Farbzentren in Kristallen sind richtungsabhängig, da sie durch die Symmetrie der Gitternachbarschaft bestimmt sind. Beim M -Zentrum mit Inversionssymmetrie und $[110]$ -Orientierung gibt es zwei verschiedene Werte für das Übergangsmoment, von denen jeder Anlaß zu einer optischen Absorptionsbande gibt: der eine, kleinere, gilt für die Richtung der Symmetrieachse, der zweite für die beiden dazu senkrechten Richtungen. Durch Einstrahlung mit polarisiertem Licht ist es nun möglich, die Orientierung der Zentren innerhalb der Kristallmatrix zu ändern und diejenige Orientierung anzureichern, deren Übergangsmomente keine oder kleine Komponenten in Polarisationsrichtung besitzen. Dies führt zu einem ausgeprägten Dichroismus, so daß man aus dem Absorptionsspektrum und seiner Richtungsabhängigkeit den erreichten Polarisationsgrad ablesen kann.

Bei ESR-Messungen an ausgerichteten M -Zentren geht man von der Vorstellung aus, daß die magnetischen Momente ebenso wie die optischen Übergangsmomente von der Kristallsymmetrie bestimmt und deshalb bei Zentren mit geringerer als kubischer Symmetrie richtungsabhängig sind. Eine stark anisotrope Hyperfeinstruktur führt aber auch zu einer anisotropen unaufgelösten Hyperfeinstruktur, und man erwartet daher eine merkliche Anisotropie des ESR-Signals.

Die Messungen wurden wiederum bei zwei verschiedenen F -Zentren-Konzentrationen in Absorption und Dispersion durchgeführt. Die Ergebnisse einer Meßreihe sind in Fig. 9 bis 11 wiedergegeben. Die Höhen der optischen M -Absorptionsbanden in den beiden Polarisationsrichtungen verhalten sich wie 5:1, die Probe enthält also in der einen $[110]$ -Richtung fünfmal mehr Zentren als in der dazu senkrechten.

Ein Vergleich der ESR in den beiden Richtungen zeigt keine merklichen Unterschiede der Signalhöhe und des Intensitätsverhältnisses der beiden Dispersionssignalkomponenten. Auch diese Messung gibt also keinen Anhaltspunkt für die Existenz eines ESR-Signals des M -Zentrums.

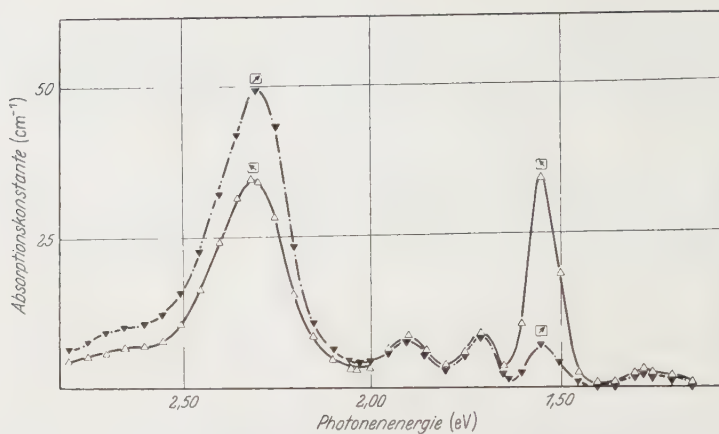


Fig. 9. Optisches Absorptionsspektrum eines additiv verfärbten KCl-Kristalls mit polarisierten *M*-Zentren, gemessen bei -190°C

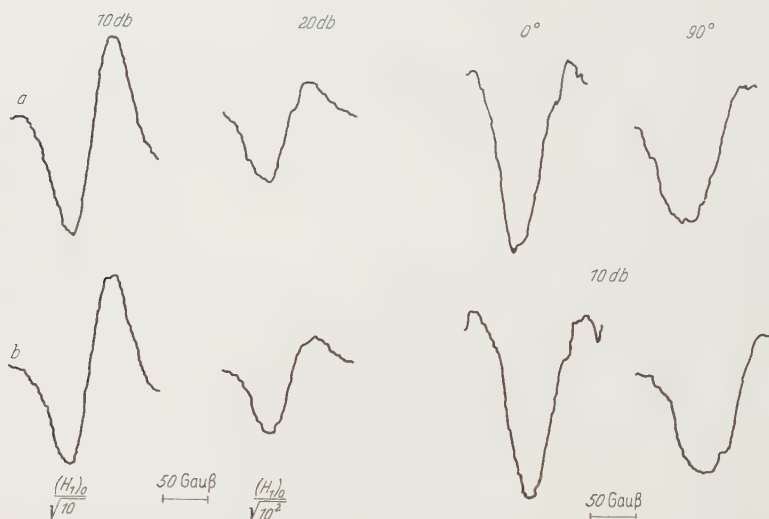


Fig. 10. ESR-Absorptionssignale von Kristallen mit *F*-Zentren und ausgerichteten *M*-Zentren bei verschiedenen Mikrowellenleistungen. *a*) *M*-Zentren $\parallel H_0$ -Feld; *b*) *M*-Zentren $\perp H_0$ -Feld. Verstärkungsfaktoren: 10 db: $2V_0$; 20 db: V_0

Fig. 11. ESR-Dispersionssignale von Kristallen mit *F*-Zentren und ausgerichteten *M*-Zentren bei 10 db Dämpfung und verschiedene Phasenlage des Signals. *a*) *M*-Zentren $\parallel H_0$ -Feld; *b*) *M*-Zentren $\perp H_0$ -Feld

§ 7. Schluß

Bei systematischen Messungen der Absorptions- und Dispersions-signale der ESR von additiv verfärbten KCl-Kristallen mit verschiedener Farbzentrenkonzentration wurde versucht, eine einwandfreie Zuordnung der gefundenen Resonanzlinien zu den im Kristall optisch nachgewiesenen

Zentrenarten zu geben. Den größten Teil der Messungen nahm dabei die Frage nach einem ESR-Signal des M -Zentrums in Anspruch, zu der schon von verschiedenen Autoren¹²⁻¹⁴ Messungen vorlagen. Die Messungen wurden in Absorption und Dispersion vor und nach der optischen F - M -Umwandlung, sowie an ausgerichteten M -Zentren durchgeführt. In keinem Fall konnte jedoch ein merkliches ESR-Signal des M -Zentrums nachgewiesen werden.

Für das Fehlen eines Spinresonanzsignals von einem paramagnetischen Störzentrum sind mehrere Ursachen denkbar:

1. Das Resonanzsignal ist so niedrig, daß zu seinem Nachweis die Empfindlichkeit der Meßanordnung nicht ausreicht; die Grenze der Nachweismempfindlichkeit unserer Meßapparatur läßt sich an Hand der aufgenommenen Meßkurven abschätzen. Danach beträgt die Mindestanzahl der nachweisbaren Spins bei fehlender Dämpfung, d. h. maximaler HF-Leistung

$$N_{\min} \approx 2 \cdot 10^{12} \cdot \Delta H \text{ Spins/Gauß.}$$

Durch Einstrahlung in die F -Bande werden die F -Zentren zu etwa 30 % abgebaut. Nimmt man an, daß sie dabei quantitativ in M -Zentren umgewandelt werden, so enthielten unsere Proben durchschnittlich etwa $N \approx 2 \cdot 10^{16}$ M -Zentren. Demnach müßte bei 30 db die Linienbreite des M -Zentren-Signals größer als 500 Gauß sein, um seinen Nachweis unmöglich zu machen. Eine Abschätzung der Linienbreite des für das Seitz-Knoxsche Modell zu erwartenden Signals ist möglich, führt aber zu einem Wert, der keinesfalls größer ist als beim F -Zentrum.

2. Der g -Faktor des M -Zentrums ist stark verschieden von dem Wert $\sim 2,0$ des freien Elektrons, so daß das Resonanzsignal weit von dem Signal des F -Zentrums entfernt liegen müßte. Um dies nachzuprüfen, veränderten wir das H_0 -Feld über einen Bereich von fast 2000 Gauß, ohne daß dabei ein Resonanzsignal festzustellen war. Auch diese Erklärungsmöglichkeit trifft daher für das M -Zentrum nicht zu.

Auch Sättigungserscheinungen auf Grund langer Relaxationszeiten können für das Fehlen der Spinresonanz nicht verantwortlich gemacht werden, da sie sich nur auf das Absorptionssignal auswirken und bei Dispersionsmessungen keine Rolle spielen. Aus all diesen Gründen kann mit großer Wahrscheinlichkeit der Schluß gezogen werden, daß das M -Zentrum diamagnetisch ist. Ein Diamagnetismus des M -Zentrums ist in dem Modell von VAN DOORN-HAVEN¹⁰ und PICK¹¹ gut verständlich, wenn man annimmt, daß die Spins zweier in benachbarten Anionenlücken lokalisierten Elektronen entgegengesetzt orientiert sind.

Zusatz bei der Korrektur: Über einige Ergebnisse der vorliegenden Arbeit wurde bereits kurz berichtet: H. GROSS und H.C. WOLF, *Naturwissenschaften* **48** (1961). Nach Abschluß der Arbeit veröffentlichte Messungen von E. SONDER [*Bull. Amer. Phys. Soc.* **2**, 114 (1961)] und W.E. BRON und R.S. TITLE [*Bull. Amer. Phys. Soc.* **2**, 113 (1961)], der ESR von M -Zentren stimmen mit unseren Messungen überein.

Herrn Professor H. PICK, der in großzügiger Weise die Durchführung dieser Arbeit am II. Physikalischen Institut der Technischen Hochschule Stuttgart ermöglichte, bin ich für sein förderndes Interesse und für viele nützliche Hinweise zu großem Dank verpflichtet.

Mein besonderer Dank gilt ferner Herrn Dr. H.C. WOLF für seine stete Anteilnahme am Fortgang der Arbeit, sowie für zahlreiche wertvolle Diskussionen und Anregungen.

Die Untersuchungen erfolgten mit Unterstützung der Deutschen Forschungsgemeinschaft.

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Universität Mainz

Phänomenologische Betrachtung zur Photon-Elektron-Wechselwirkung in einem Plasma

Von

HEINRICH HORA[★] und HENNING MÜLLER

Mit 1 Figur im Text

(Eingegangen am 24. Mai 1961)

The question at stake is, whether a simple physical connection may be found between Richardson equation for thermionic emission on the one hand, and Richardson equation for photoelectric emission on the other hand. The proposition of such a connection is based on the following supposition: that electrons are not only elements of a (Fermi-Dirac-) statistical ensemble and, as such, cause thermionic phenomena; but that they can also interact with a radiation field, thereby causing an additional emission current, according to Richardson (photoelectric) equation. — It is shown in detail that the current emitted from a metal of 2000 °K is determined by the complete radiation of this metal only to a very slight degree. It is then estimated however, that within temperatures of some million degrees Kelvin the excitation of electrons caused by complete radiation will be much greater than that caused by interaction.

1. Einleitung

Für die Vorgänge, die sich in einem Hochtemperaturplasma abspielen, ist der mechanische Druck der geladenen Teilchen, insbesondere der Elektronen, von Bedeutung; es ist bekannt, daß dabei ihre Wechselwirkung mit dem elektromagnetischen Felde der Temperaturstrahlung¹ nicht vernachlässigbar zu sein braucht. Ziel der folgenden Betrachtungen ist in erster Linie eine Abschätzung der Temperatur, vor der ab diese Wechselwirkung für die Elektronen von Bedeutung wird. — Zunächst werden die Richardson-Dushman'sche Formel für die Glühemission und die sog. lichtelektrische Richardsonsche Gleichung einander gegenübergestellt, wobei die Diskussion sich weniger auf mathematische Fragen als vielmehr auf die zugrunde gelegten physikalischen Voraussetzungen bezieht und deren Unterschiede klarzumachen versucht. Das ist insofern nicht ganz leicht, als die lichtelektrische Richardson-Gleichung ihre Entstehung einer unzutreffenden Analogie mit dem Glühemissionsprozeß verdankt, später experimentell in ihren wesentlichen Eigenschaften bestätigt wurde, eigentlich jedoch einen ganz anderen Prozeß

[★] Nun bei IBM-Laboratorien, Böblingen/Württ.

¹ ROSENBRUCH, M.N., and N. ROSTOCKER: UN Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva 1958, Vol. 32, p. 144.

beschreibt. Die Schwierigkeiten, die dem Verständnis der lichtelektrischen Richardson-Gleichung entgegenstehen, wurden erwähnt unter anderem von HERRING und NICHOLS², die auch eine Zusammenstellung der diese Frage betreffenden Literatur geben.

2. Die glühelektrische und lichtelektrische Richardson-Gleichung

Zunächst zur Richardson-Dushman-Gleichung für den Glühemissionsstrom. — Wenn man den Druck einer Anzahl von Teilchen bestimmen will, die miteinander in verlustfreier Wechselwirkung stehen, so kann man ihn im Gleichgewicht, ohne Kenntnis der Einzelprozesse, statistisch aus dem Impuls ermitteln, den die Teilchen auf ein beliebig orientiertes Flächenelement (einseitig) übertragen. Hat im besonderen der Rand des in Rede stehenden Systems die Eigenschaft, daß Teilchen durchgelassen werden, deren Impulse (genauer: für die Normalkomponente des Impulses) einen bestimmten Wert übersteigt, und daß Teilchen mit geringerem Normalimpuls reflektiert werden, so kann man den durch die Oberfläche austretenden Teilchenstrom berechnen. Schreibt man für die Gesamtenergie der geladenen Teilchen einen bestimmten, durch eine Temperatur T gegebenen Wert und für die Energieverteilung im Inneren des betrachteten Systems für den Fall der Entartung eine Fermi-Dirac-Statistik vor, so ergibt sich für den Teilchenstrom (besser: für den Ladungsstrom) unter den üblichen Voraussetzungen die Gleichung^{3,4}

$$\left. \begin{aligned} I_{gl} &= A_2 T^2 e^{-\frac{W_a - W_i}{kT}} & (W_i \gg kT) \\ &= A_1 T^{\frac{1}{2}} e^{-\frac{W_a}{kT}} & (W_i \ll kT). \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

Es werde eine Gesamtheit von Elektronen der Ladung e und der Masse m ins Auge gefaßt; in diesem Fall liefert die Theorie für die Konstanten

$$A_2 = \frac{4\pi m k^2 e}{h^3}, \quad A_1 = ne \sqrt{\frac{k}{2\pi m}} \quad (2)$$

und das Entartungskriterium $W_i \gg kT$ kann in der Form geschrieben werden

$$nh^3 \gg (2mkT)^{\frac{3}{2}}.$$

Die zweite der Gln. (1) entspricht dem nichtentarteten (Boltzmannschen) Fall. W_a bedeutet die von einem Elektron beim Durchtritt durch die Randfläche zu leistende („wahre“) Arbeit, W_i ist das thermodynamische

² HERRING, C., and M.H. NICOLS: Rev. Mod. Phys. **21**, 266 (1949).

³ NORDHEIM, L.: Z. Physik **46**, 833 (1928). — SOMMERFELD, A.: Z. Physik **47**, 1 (1928).

⁴ SOMMERFELD-BETHE: Elektronentheorie der Metalle. Berlin 1933. [In Handbuch der Physik, Bd. 24 Teil II.

Potential pro Elektron, $W_a - W_i$ die („effektive“) Austrittsarbeit. h und k sind Plancksche und Boltzmannsche Konstante, n bedeutet die Anzahl der Elektronen pro Volumeneinheit. (1) beschreibt also beispielsweise den Prozeß der thermischen Emission freier Elektronen aus einem Metall, wie er bis zu Temperaturen von einigen tausend Grad Kelvin meßbar ist. Die nötigen Voraussetzungen werden auch zutreffen, wenn das Metall in Form eines Plasmas bei hohen Temperaturen vorliegt, solange man davon ausgeht — wie man es üblicherweise stillschweigend tut —, daß die Elektronen durch die Fermi-Statistik zureichend beschrieben werden. Über die durch statistische Betrachtung nicht im einzelnen erfaßten, zur Herbeiführung eines Gleichgewichtszustandes natürlich notwendigen Wechselwirkungen braucht man einerseits keine bestimmten Annahmen zu machen; dennoch ist andererseits diejenige Eigenschaft der Elektronen, welche einen Energieaustausch mit der von ihnen unabhängigen elektromagnetischen Hohlraumstrahlung verursacht — wie es uns scheint und hier zur Diskussion gestellt sein möge — dazu geeignet, eine vorbehaltlose Beschreibung durch das gleichsam naive statistische Modell in Frage zu stellen. Die Koppelung der Elektronen mit dem Photonengas der Hohlraumstrahlung, welches natürlich eine andere Energieverteilung hat, kann offenbar eine von der Fermi-Dirac'schen abweichende Verteilungsfunktion bewirken und bedeutet, daß nicht ausschließlich die Wechselwirkung der Elektronen untereinander ihr Gleichgewicht bestimmt.

Nun zur lichtelektrischen Richardson-Gleichung. — Bei seinen Überlegungen über den Prozeß der Glühemission fragte RICHARDSON nach deren Ursache. Durch die klassische Statistik des Elektronengases allein war das Verdampfen der Teilchen schon qualitativ bestimmt, und es schien nicht sinnvoll, darüber hinaus noch Einzelheiten des Emissionsprozesses zu suchen. Dennoch kam RICHARDSON auf den Gedanken⁵, daß die in dem heißen Metall vorhandene Hohlraumstrahlung zufolge lichtelektrischer Wechselwirkung als einzige Ursache für die Elektronenemission in Betracht komme. RICHARDSON folgerte weiter: wenn man in einem kalten Metall der Temperatur ϑ die Hohlraumstrahlung einer bestimmten hohen Temperatur $T \gg \vartheta$ einwirken läßt, dann muß der Zustand des Gleichgewichts durch denselben Effekt charakterisiert sein wie im Fall der Glühemission. Davon angeregt hat WILSON⁶ die Photoemission aus einem Metall bei Einwirkung einer Hohlraumstrahlung in Abhängigkeit von deren Temperatur gemessen und fand in der Tat ein Gesetz von der Form der Gl. (1). Der Verlauf der Exponentialfunktion war deutlich ausgeprägt, und der Exponent entsprach der lichtelektrischen Grenzfrequenz. Über den Faktor T' und insbesondere über den

⁵ RICHARDSON, O.W.: Phil. Mag. **23**, 594 (1912).

⁶ WILSON, W.: Proc. Roy. Soc. Lond. A **93**, 359 (1917).

Exponenten r konnte auf Grund der Messungen nichts Entscheidendes ausgesagt werden: bemerkenswert war jedoch, daß der Betrag des Emissionsstromes viele Zehnerpotenzen kleiner war als bei entsprechenden Thermoemissionsmessungen. Dieser Umstand weckte seinerzeit keine allzugroßen Bedenken, da man aus glühelektrischen Messungen, bei denen sich stets dieselbe Mengenkongstante hätte ergeben sollen, auch schon um mehrere Zehnerpotenzen streuende Werte gefunden hatte. Die lichtelektrische Richardson-Gleichung wurde später noch einigemal verifiziert⁷. SUHRMANN versuchte dies⁸, indem er nicht die lichtelektrische Gesamtemission maß, sondern die spektrale Verteilung der Empfindlichkeit $E(\nu)$. Unter der Voraussetzung des Planckschen Strahlungsgesetzes für die Verteilung der in der Temperaturstrahlung enthaltenen Energie ergibt sich für die lichtelektrische Gesamtemission

$$I_{\text{ph}} = \int_0^{\infty} E(\nu) \frac{2h\nu^3}{c^2 \left(e^{\frac{h\nu}{kT}} - 1 \right)} d\nu. \quad (3)$$

Wenn dem Photostrom hinsichtlich seiner Temperaturabhängigkeit eine Form nach Gl. (1) gegeben wird, so können durch die Integration (3) gemäß

$$I_{\text{ph}} = M_r T^r e^{-\frac{W}{kT}} = \int_0^{\infty} E(\nu) f(\nu, T) d\nu \quad (4)$$

Austrittsarbeit und Mengenkongstante für das untersuchte Metall bestimmt werden. — Anhaltspunkte für die Form der lichtelektrischen Richardson-Gleichung versuchte ferner BECKER⁹ zu erhalten, indem er für die spektrale Empfindlichkeit der Kathode eine allgemeine Form annahm. BECKER ließ sich dabei von der Vorstellung leiten, daß nach dem Augenschein der damaligen Messungen hierfür ein parabolischer Verlauf dritten oder vierten Grades anzunehmen war. Entsprechend ergab sich dann für den Exponenten r in (4) der Wert 3 bzw. 4.

3. Zur Begründung der lichtelektrischen Richardson-Gleichung

Nachdem auf diese Weise eine gewisse Unsicherheit eingetreten war, ob überhaupt ein mehr als formaler Zusammenhang zwischen den lichtelektrischen und den glühelektrischen Erscheinungen besteht, entstand die Frage nach einer theoretischen Begründung für die lichtelektrische Richardson-Gleichung. Man kann natürlich eine Theorie erhalten, wenn man — wie BECKER — Annahmen über die spektrale Verteilung der Empfindlichkeit macht. Man kann aber andererseits auch — und damit

⁷ ROY, S.C.: Proc. Roy. Soc. Lond. A **112**, 599 (1926).

⁸ SUHRMANN, R.: Z. Physik **33**, 63 (1925); **54**, 99 (1929).

⁹ BECKER, A.: Ann. Phys. (4) **78**, 83 (1925); (5) **2**, 249 (1929).

werden die Verhältnisse übersichtlicher — die Quantenausbeute $Q(\nu)$ — Zahl der emittierten Elektronen/Zahl der absorbierten Lichtquanten aus einem Frequenzbereich $\Delta\nu$ — der Photokathoden zugrunde legen, womit man nicht nur den parabolischen Verlauf der spektralen Verteilung für die Quantenausbeute nahe der Grenzfrequenz, sondern auch das bekannte Verhalten der Verteilungskurve für große Photoenergien ausnutzen kann. Das Plancksche Strahlungsgesetz muß dann auf die Zahl der Photonen umgerechnet werden, und man erhält an Stelle von (3) und (4)

$$\int_0^{\infty} Q(\nu) \frac{2\nu^2}{c^2 \left(e^{\frac{h\nu}{kT}} - 1 \right)} d\nu = M_r T^r e^{-\frac{h\nu_0}{kT}}. \quad (5)$$

Wenn man in der linken Seite von Gl. (5) neben dem Planckschen Strahlungsgesetz für $Q(\nu)$ allein die Eigenschaft voraussetzt, daß $Q(\nu)$ unterhalb der Grenzfrequenz ν_0 verschwindet und oberhalb der Grenzfrequenz größer als Null und beschränkt ist, so kann man damit die rechte Seite von Gl. (5), d.h. die lichtelektrische Richardson-Gleichung theoretisch begründen; denn es folgt mit diesen Voraussetzungen durch Ausrechnung des Integrals in Gl. (5) die Form mit der Mengenkonstante M_r , dem Faktor T^r mit $r=3$ und dem Exponentialfaktor mit der (effektiven) Austrittsarbeit $h\nu_0$ im Zähler des Exponenten¹⁰. Hält man diese Form für den Ausdruck (4) fest und berechnet nun umgekehrt $Q(\nu)$ als Lösung einer Integralgleichung, so erhält man — bei entsprechend anderer Schreibweise der früheren Rechnung¹⁰ —, wenn man den Index 3 bei M unterdrückt:

$$Q(\nu) = \begin{cases} 0 & \text{für } \nu < \nu_0 \\ \frac{M c^2}{4} \left(\frac{h}{k} \right)^3 \frac{(\nu - \nu_0)^2}{\nu^2} & \text{für } \nu > \nu_0. \end{cases} \quad (6)$$

Bemerkenswert ist, daß der so erhaltene Zusammenhang für die spektrale Verteilung der Quantenausbeute von Photokathoden, grob gesehen, den an Halbleiterphotokathoden gemessenen Verlauf wiedergibt (für Cs_3Sb vgl. ¹⁰) und auch das Verhalten von Alkalihalogeniden¹¹ und Metallen¹² (im fernen UV) einigermaßen richtig darstellt. — Für den Fall, daß man mit der Photoemission aus verschiedenen Bindungsniveaus der Elektronen rechnen muß, was unterschiedlichen Grenzfrequenzen entspricht, kann man die Kurve der spektralen Verteilung für die Quantenausbeute in Komponenten zerlegen und erhält so eine verallgemeinerte Form der lichtelektrischen Richardson-Gleichung¹².

¹⁰ GÖRLICH, P., H. HORA u. W. MACKE: Jenaer Jahrbuch 1957, S. 91. — Exp. Techn. Phys. **5**, 217 (1957).

¹¹ PHILIPP, H.R., and E.A. TAFT: J. Phys. Chem. Solids **1**, 159 (1956). — TAFT, E.A.: J. Phys. Chem. Solids **3**, 1 (1957).

¹² GÖRLICH, P., u. H. HORA: Optik **15**, 116 (1958).

Aus (6) kann man die Mengenkonzstante ausrechnen, wenn man berücksichtigt, daß die Quantenausbeute für hohe Frequenzen gegen $\frac{1}{2}$ geht¹⁰. Man erhält

$$M = 3,16 \cdot 10^{-9} \text{ Amp/Grad}^3 \text{ cm}^2. \quad (7)$$

Vorausgesetzt ist dabei, daß ein Element der Kathodenoberfläche seine Strahlung aus einem Raumwinkel $\Delta\Omega = 2\pi$ empfängt; bei kleineren $\Delta\Omega$ ist eine entsprechende Reduktion vorzunehmen. — Aus den Messungen

von SUHRMANN⁸ ergibt sich ebenfalls unter Berücksichtigung des Raumwinkels $\Delta\Omega = 2\pi$ aus dem Kurvenverlauf nahe 1000° K für ein T^3 -Gesetz eine Mengenkonzstante M nach Gl. (4)

$$M_3 = 2,1 \times \left. \begin{array}{l} \\ \times 10^{-9} \text{ Amp/Grad}^3 \text{ cm}^2, \end{array} \right\} (8)$$

was verglichen mit der sonst festzustellenden Streuung gemessener und berechneter Werte von M im Falle der Glühemission verhältnismäßig gut mit (7) übereinstimmt.

Der Vergleich der Messungen an einer Multialkalkathode nach SPICER^{13,14}

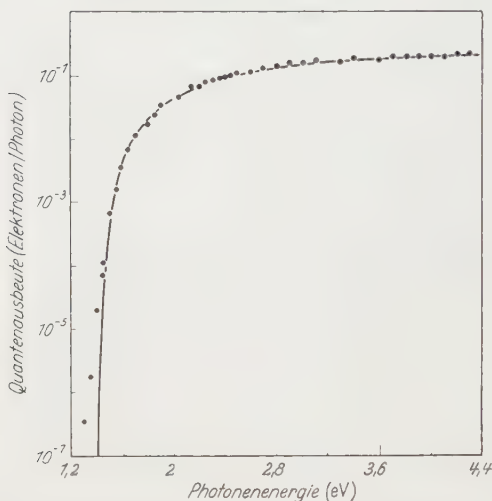


Fig. 1. Spektrale Verteilung für die Quantenausbeute einer [Cs] Na₂K₃₋₂Sb-Photokathode. Meßpunkte nach SPICER¹³, Kurve nach Gl. (6) mit (7) und dem Parameter $h\nu_0 = 1,4 \text{ eV}$

mit einer berechneten Kurve ($h\nu_0 = 1,4 \text{ eV}$) ist in Fig. 1 wiedergegeben. Der quadratische Anstieg von $Q(\nu)$ nahe der Grenzfrequenz steht übrigens auch mit dem Ergebnis der Fowlerschen Theorie¹⁵ in Übereinstimmung.

4. Folgerungen

Trotz des gemeinsamen geschichtlichen Ursprungs von Richardson-Dushman-Gleichung und lichtelektrischer Richardson-Gleichung ist vielleicht mit der hier vorgetragenen Betrachtung klar geworden, daß ein Unterschied zwischen beiden Formulierungen besteht, der sich kurz so kennzeichnen läßt: für hohe Temperaturen — hoch in dem Sinn, daß

¹³ SPICER, W.E.: Phys. Rev. **112**, 114 (1958).

¹⁴ FRISCHMUTH-HOFFMANN, G., P. GÖRLICH u. H. HORA: Z. Naturforsch. **15a**, 1018 (1960).

¹⁵ FOWLER, R.H.: Phys. Rev. **33**, 45 (1931).

der in beiden Formeln dann gleiche Exponentialfaktor nahezu 1 ist — führen die Elektronen — gewissermaßen sich selbst überlassen — entsprechend der Statistik zu einem Ansteigen des Emissionsstromes gemäß einem $T^{\frac{1}{2}}$ -Gesetz, während ihre Anregung durch die schwarze Strahlung wegen des Anstieges der Photonenkonzentration nach einem T^3 -Gesetz (Stefan-Boltzmann-Gesetz¹⁰) entsprechend zu einem T^3 -Anstieg des Emissionsstromes führt. Noch einmal, anders und deutlicher formuliert: Dem Elektronengas, für sich allein betrachtet, entspricht oberhalb der Entartungstemperatur ein Ansteigen des Emissionsstromes gemäß $T^{\frac{1}{2}}$. Die Verteilung der Elektronen auf die Energieskala ist durch das Modell der Boltzmann-Statistik bestimmt. Andererseits ist aber zu bedenken, daß die (zunächst abgeschlossen gedachte) Elektronengesamtheit Energie aus der durch die Temperatur T bestimmten Hohlraumstrahlung bezieht, wobei der Austauschmechanismus zunächst einmal gar nicht diskutiert zu werden braucht. Da die Photonenkonzentration einem T^3 -Gesetz folgt¹⁰, wird man mithin annehmen müssen, daß auch der Emissionsstrom bei hinreichend hohen Temperaturen mit der 3. Potenz von T ansteigt. Es überwiegt hier also der Anteil, der durch die Wechselwirkung des Elektronengases mit der Hohlraumstrahlung bestimmt ist. — Eine einheitliche quantenstatistische Beschreibung des Systems Elektronengas-Strahlungsfeld ist mit einfachen Hilfsmitteln offenbar nicht zu erreichen. Man könnte zwar an eine Verwendung der von GENTILE¹⁶ diskutierten intermediären Statistik denken und ein einheitliches „Eigenvolumen“ der Teilchen im Phasenraum einzuführen versuchen — doch dürfte man nicht übersehen, daß eine solche Beschreibung nur formalen Charakter haben könnte, da physikalisch entscheidend nicht das „Eigenvolumen“ oder im Zusammenhang damit die maximale Besetzungszahl einer Zelle im Phasenraum ist, sondern das Symmetrieverhalten der Eigenfunktion des Systems. Da dieses Symmetrieverhalten bei gleichartigen Teilchen aber nur durch die Attribute „symmetrisch“ oder „antimetrisch“ gekennzeichnet werden, mithin das „Eigenvolumen“ der Teilchen im Phasenraum nur die Werte 1 und -1 ^{17,18} annehmen kann, entfällt schon darum die Möglichkeit einer physikalisch begründbaren, d.h. mehr als formalen Beschreibung des Systems Elektronengas-Strahlungsfeld mit Hilfe einer einheitlichen (intermediären) Statistik.

Die Vorstellung, daß das Elektronengas im Metall einmal gewissermaßen sich selbst überlassen Anlaß zu einem Emissionsstrom gibt und zum anderen als Folge der Wechselwirkung mit einem Strahlungsfeld zu einem zusätzlichen Emissionseffekt führt, könnte die Annahme nahelegen,

¹⁶ GENTILE: Nuovo Cim. Ann. **17**, (10) (1940).

¹⁷ BRILLOUIN: Quantenstatistik. Berlin 1931.

¹⁸ MÜLLER, H: Ann. Phys. **7**, (420) (1950).

daß sich der emittierte Gesamtstrom additiv gemäß

$$I_{\text{ges}} = I_{\text{gl}} + I_{\text{ph}} \quad (9)$$

aus einem Anteil I_{gl} , welcher ohne Mitwirkung eines Strahlungsfeldes zustande kommt, und aus einem Anteil I_{ph} zusammensetzt, welcher bestimmt ist durch die Einwirkung eines Hohlraumstrahlungsfeldes der Temperatur T , wobei man für diesen letzten Anteil das Doppelte des Stromes annehmen kann, den gemäß (4) die aus dem Halbraum über der (kalten) Kathode einfallende, der gleichen Temperatur T entsprechende Strahlung veranlaßt. — Wegen des verschieden starken Ansteigens der beiden Anteile I_{ph} und I_{gl} mit der Temperatur wird man ein T angeben können, bei dem die Emissionskomponenten gleich sind, und zwar ermittelt man dieses T durch Vergleich von (1), (4) und (7); es liegt in der Größenordnung von 10^6 °K. Andererseits ist die lichtelektrische Komponente I_{ph} für ein $T = 2000^\circ$ K, wie an anderer Stelle bereits festgestellt wurde¹⁹, wesentlich, und zwar etwa 10^7 mal kleiner als I_{gl} .

Die Unsicherheit der erhaltenen Ergebnisse scheint nicht allein darin zu liegen, daß ganz bewußt von einfachsten Vorstellungen ausgegangen wurde, sondern es werden sicherlich auch die vorgetragenen Überlegungen über den Zusammenhang zwischen Richardson-Gleichung und lichtelektrischer Richardson-Gleichung noch einer eingehenderen und ausgereifteren Interpretation bedürfen, wenn sich der skizzierte Weg überhaupt als richtig erweisen sollte. Das Ziel, einen Anhaltspunkt dafür zu bekommen, von welchen Temperaturen an die Wechselwirkung der Hohlraumstrahlung mit den Elektronen eines Plasmas entscheidend ins Gewicht fällt, erscheint jedoch so interessant, daß die vorstehenden Gedankengänge mit allen entsprechenden Bedenken vorbehaltlich einer weiteren Diskussion einmal festgehalten werden sollten.

Zu einer Reihe der hier dargestellten Gedanken wurde einer der Verfasser (H. H.) durch kritische Bemerkungen im Anschluß an einen Vortrag¹⁹ angeregt.

¹⁹ GÖRLICH, P., u. H. HORA: Vortrag auf der Arbeitstagg. „Festkörperphysik und Physik der Leuchtstoffe“ Erfurt, Oktober 1957.

Aus dem I. Physikalischen Institut der Universität München

Über den Einfluß elektrolytischer Wasserstoffbeladung auf die Magnetisierung von Nickel

Von

HERMANN JOH. BAUER und ELMAR SCHMIDBAUER

Mit 8 Figuren im Text

(Eingegangen am 5. Juni 1961)

Die elektrolytische Beladung von Nickel mit Wasserstoff bis zu einer Anreicherung von ca. 0,7 Atomen H auf 1 Atom Ni führt zu einer starken Verformung der ferromagnetischen Hysteresse und einem erheblichen Rückgang der Sättigungsmagnetisierung. Mit der bereits unterhalb der Zimmertemperatur erfolgenden Desorption des Wasserstoffs nimmt der Ferromagnetismus wieder zu.

Wie bereits mitgeteilt wurde¹, kann elektrolytisch abgeschiedener Wasserstoff die Magnetisierung von kompaktem Nickel praktisch zum Verschwinden bringen, wenn man sich eines Beladungsverfahrens nach BARANOWSKI und SMIALOWSKI² bedient und Nickel in Schwefelsäure mit einem Zusatz von Thioharnstoff kathodisch mit Wasserstoff belädt. Die durch dieses Beladungsverfahren mögliche Anreicherung bis zu etwa 0,7 Atomen Wasserstoff auf 1 Atom Nickel übertrifft die durch Beladung aus der Gasphase erreichbare Konzentration um das 10⁴-fache und führt nach JANKO³ zu einer Gitteraufweitung bis zu 6%. — Eine derartig starke Wasserstoffanreicherung war bisher nur bei Palladium möglich⁴.

Eine Beeinflussung der Magnetisierung durch Wasserstoffadsorption an feinsten Nickelnkörnern bzw. an superparamagnetischem Nickel ist schon länger bekannt. Dabei sind die Oberflächen im Verhältnis zum Volumen so groß, daß durch Anlagerung von 1 Atom Wasserstoff pro Nickelatom der Oberfläche ein deutlicher Sättigungsrückgang festgestellt werden konnte⁵. In diesem Zusammenhang ist das Raney-

¹ BAUER, H. J., u. E. SCHMIDBAUER: *Naturwissenschaften* **11**, 425 (1961).

² BARANOWSKI, B., and M. SMIALOWSKI: *Intern. J. Phys. Chem. Solids* **12**, 206 (1959); — *Bull. Acad. Pol. Sci., Sér. sci. chim.* **7**, 663 (1959). — BARANOWSKI, B.: *Bull. Acad. Pol. Sci., Sér. sci. chim.* **7**, 887, 891, 897, 907 (1959).

³ JANKO, A.: *Naturwissenschaften* **10**, 225 (1960).

⁴ NIKURADSE, A., u. R. ULBRICH: *Das Zweistoffsystem Gas-Metall*, S. 104 ff. München: Oldenburg 1950.

⁵ BROEDER, J. J., L. L. VAN REIJEN et A. R. KORSWAGEN: *J. Chim. physique Physico-chim. biol.* **54**, 37 (1957). — DIETZ, R. E., and P. W. SELWOOD: *J. Appl. Phys.* **30**, 30 S, 101 S (1959). — SELWOOD, P. W.: *Chemisorption on superparamagnetic nickel*. In: *Structure and Properties of thin Films* (C. A. NEUGEBAUER, J. B. NEWKIRK, D. A. VERMILYEA), S. 490. New York and London: J. Wiley & Sons, Inc. 1959.

Nickel zu erwähnen, das auf Grund einer künstlich erzeugten Porosität ein beträchtliches Aufnahmevermögen für Wasserstoff zeigt. Auch in diesem Fall ist eine Senkung der Magnetisierung durch Wasserstoff beobachtet worden; eine Gitteraufweitung wurde dabei nicht bemerkt⁶.

Ältere Arbeiten verweisen auf einen mehr oder weniger reversiblen Einfluß kathodisch abgeschiedenen Wasserstoffs auf die Magnetisierung des Eisens⁷.

An Nickel ist uns eine dem oben erwähnten magnetischen Volumeneffekt entsprechende Erscheinung durch Einlagerung von Wasserstoff,

sei es kathodisch, sei es aus der Gasphase, bisher nicht bekanntgeworden. Im folgenden seien Versuchsanordnung und weitere Meßergebnisse mitgeteilt.

1. Versuchsanordnung

Zur Untersuchung des Effektes an $6\ \mu$ dicken Walznickelfolien von Heraeus* benutzten wir folgende ballistische Kompensationsmethode: Zwei symmetrische entgegengesetzt geschaltete Induktionsspulen waren zur genaueren Abgleichung mit einer Variometerspule, zur Eichung des Systems mit der Primärspule einer Gegeninduktivität und schließlich mit einem ballistischen Galvanometer in Reihe geschaltet (Fig. 1). Die Induktionsspulen und die Variometerspule befanden sich in einer wassergekühlten Feldspule (100 Oe/A). In die eine der In-

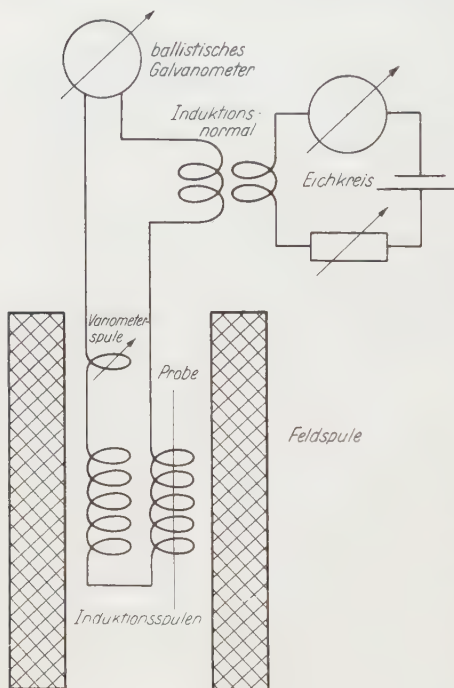


Fig. 1. Schema der Meßanordnung

duktionsspulen wurde leicht auswechselbar die an einer Glasleiter befestigte Nickelfolie eingeführt. Die Probe konnte der Feldspule entnommen und im Elektrolysebad (1 n H_2SO_4 mit 0,2 g/Liter Thioharn-

* Messungen der ferromagnetischen Widerstandsanomalie dieser Folien, die wir Fräulein E. LANGER verdanken, weisen durch die normale Lage ihrer Curie-Temperatur (354°C) auf einen ausreichenden Reinheitsgrad hin.

⁶ KOKES, R. J., and P. H. EMMETT: J. Amer. Chem. Soc. **81**, 5032 (1959).

⁷ KAUFMANN, W., u. W. MEIER: Phys. Z. **12**, 513—532 (1911). — REBER, R. K.: Physics **5**, 297—301 (1934).

stoff und Platinanode) beladen werden. Wenn nicht anders vermerkt, betrug die Beladungszeit bei einer Stromdichte von 20 mA/cm^2 14 Std und die Meßtemperatur $12,5 \pm 0,5^\circ \text{C}$.

2. Meßergebnisse und Diskussion

In Fig. 2 sind zwischen 0 und 2770 Oe gemessene absteigende Hystereseäste der Nickelfolie gezeigt. Kurve 0 gibt den unbeladenen Zustand

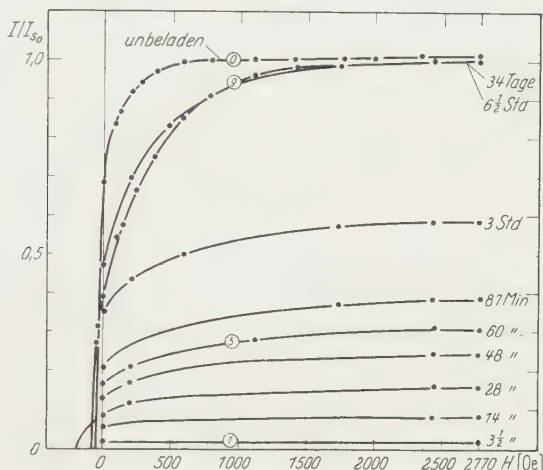


Fig. 2. Absteigende Hystereseäste einer 6μ dicken Nickelfolie. Kurve 0: Magnetisierung vor der Beladung. Kurve 1—9: Magnetisierung $3\frac{1}{2}$ min bis 34 Tage nach Beladung mit Wasserstoff. Nach 3 Std Erwärmung auf Zimmertemperatur. (I_{s0} ist die auf das Feld 0 extrapolierte Sättigungsmagnetisierung)

wieder, Kurve 1 die Magnetisierung $3\frac{1}{2}$ min nach Beendigung der Beladung. Die Magnetisierung ist durch die Beladung auf etwa $\frac{1}{100}$ der Magnetisierung der unbeladenen Probe abgesunken. Die übrigen Kurven zeigen das Wiedererstehen der Magnetisierung im Laufe der Zeit mit zunehmender Entgasung. Nach $6\frac{1}{2}$ Std ist ein Endzustand erreicht (Kurve 9), der hinsichtlich der Sättigung auch nach einem Monat bestehen bleibt und nur etwa 2% unter der Sättigung der unbeladenen Probe liegt.

Die Remanenz macht den zeitlichen Gang entsprechend mit. Sie hat aber in den beladenen Zuständen im wesentlichen etwa den halben Wert der jeweiligen Sättigung, im Gegensatz zur Kurve 0, bei der die Remanenz $\frac{2}{3}$ der Sättigung beträgt. Die Koerzitivkraft ist in den beladenen Zwischenzuständen vergrößert, erreicht aber ebenfalls bei der Entgasung nicht den Ausgangswert.

Fig. 3 zeigt die relative Sättigungsmagnetisierung und die Remanenz über der Entgasungszeit t angetragen. Kurz nach der Beladung verläuft die Sättigung eine Zeitlang (2–3 Std.) proportional zu $t^{\frac{1}{2}}$.

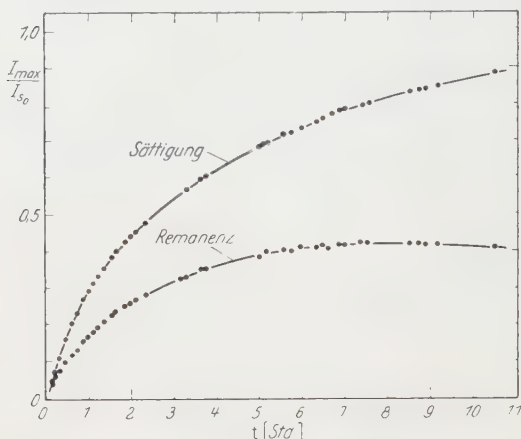


Fig. 3. Zeitliche Zunahme der Sättigungs- und Remanenzwerte bei der Entgasung. (I_{\max} ist die Magnetisierung bei 2770 Oe, I_{s_0} die auf das Feld 0 extrapolierte Sättigungsmagnetisierung)

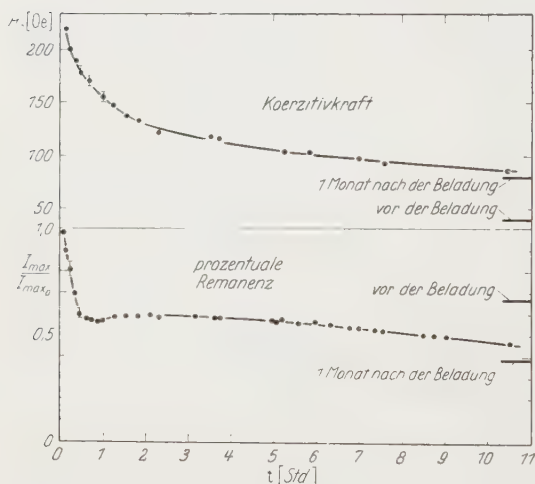


Fig. 4. Koerzitivkraft und prozentuale Remanenz in Abhängigkeit von der Entgasungszeit. (I_{\max} , I_{\max_0} sind die Magnetisierungen der beladenen und der unbeladenen Probe bei 2770 Oe)

der Entgasung die Sättigungsmagnetisierung auf etwa 1,5 % des Anfangswertes gesunken ist, andererseits der Entgasungsvorgang einem End-

In Fig. 4 sind die prozentuale Remanenz und die Koerzitivkraft über der Entgasungszeit aufgetragen. Sie beginnen beide mit auffallend großen Werten. Dies dürfte auf hoher Verspannung bzw. innerem Druck durch Überbeladung mit Wasserstoff beruhen⁸.

Um eine optimale magnetische Sättigungserniedrigung zu erhalten, waren einmalige Elektrolysezeiten von 5 bis 8 Std erforderlich. In Anlehnung an das Verfahren von BARANOWSKI und SMIALOWSKI (l. c.), die durch mehrmalige Wiederholung der Beladung ein Beladungsmaximum anstreben, wurde in Fig. 5 an Hand von Magnetisierungsmessungen der Einfluß einer Mehrfachbeladung auf den Entgasungsvorgang geprüft. Man erkennt, daß einerseits in allen Fällen zu Beginn

⁸ SZKLARSKA-SMIALOWSKA, Z., u. M. SMIALOWSKI: Bull. Acad. Pol. Sci., Sér. sci. chim. 6, 427 (1958).

zustand zustrebt. Dies läßt auf eine Art Alterung des Materials durch die Diffusion des Wasserstoffs schließen und könnte folgendermaßen verstanden werden: Bereits bei der ersten Beladung verteilt sich der

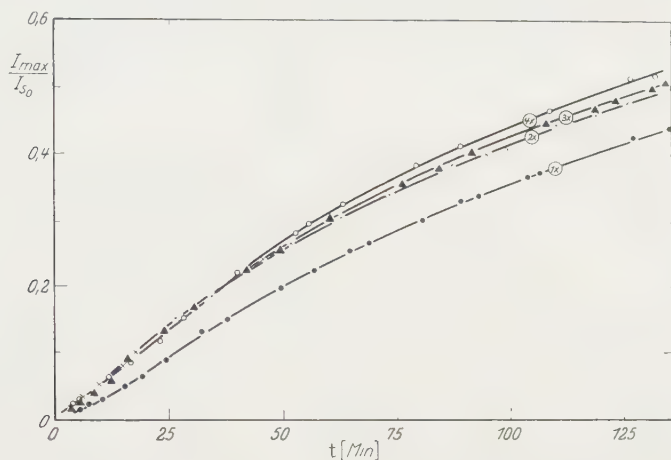


Fig. 5. Zeitliche Zunahme der Sättigungswerte während der Entgasung bei Wiederholung der Beladung. Parameter: Anzahl der etwa 20stündigen Beladungen. Die $2\frac{1}{4}$ stündigen Beladungspausen dienen der Magnetisierungsmessung. (I_{\max} , I_{s_0} wie bei Fig. 3)

Wasserstoff im Gitter praktisch völlig, andererseits werden durch die Beladungs- und Entgasungsprozesse zusätzliche Oberflächen (z.B. entlang der Korngrenzen) geschaffen, die dem Wasserstoff einen rascheren

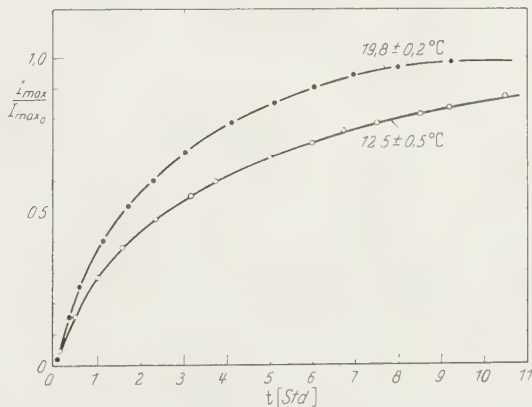


Fig. 6. Zeitliche Zunahme der Sättigungswerte in Abhängigkeit von der Temperatur. (I_{\max} , I_{\max_0} wie bei Fig. 4)

Austritt gestatten. Deutliche Veränderungen der Probenoberfläche sind schon mit bloßem Auge zu erkennen. — Aus Fig. 6 ist eine starke Temperaturempfindlichkeit des Entgasungsvorganges zu ersehen.

Zur Kontrolle, wieviel Wasserstoff aus den Proben in Gegenwart von Luft entwich, wurde eine kontinuierliche Volumenmessung durchgeführt

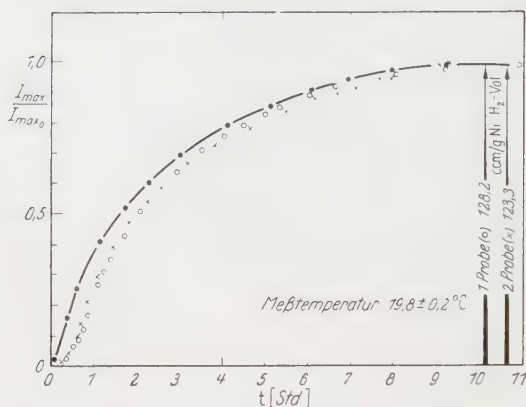


Fig. 7. Sättigungsmagnetisierung (●) und Wasserstoffvolumen (○, ×) in Abhängigkeit von der Entgasungszeit. Die Ordinatenmaßstäbe sind so gewählt, daß die Werte der Wasserstoffvolumina pro Gramm Ni bei Normalbedingungen mit dem Wert der Sättigungsmagnetisierung der entgasten Probe zusammenfallen.

(I_{\max} , I_{\max_0} wie bei Fig. 4)

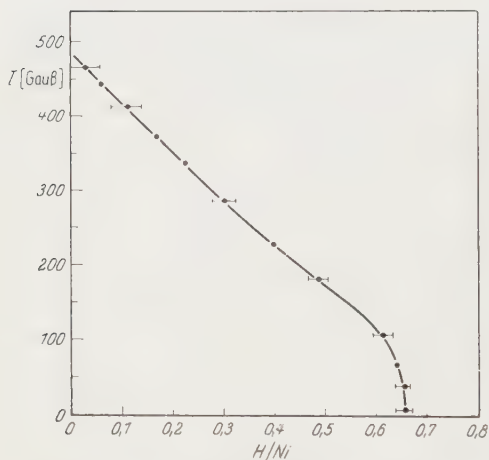


Fig. 8. Die Sättigungsmagnetisierung des Nickels bei $19,8^\circ\text{C}$ in Abhängigkeit vom Atomverhältnis Wasserstoff zu Nickel

die mit der Wasserstoffaufnahme verknüpfte Herabsetzung seiner Suszeptibilität⁹. In Fig. 8 ist schließlich die Magnetisierung des Nickels

⁹ VOGT, E.: Physikalische Eigenschaften der Metalle, Bd. 1, S. 247 ff. Leipzig: Akad. Verlagsges. Geest & Portig K.-G. 1958.

und die Volumenwerte bei Normalbedingungen des pro Gramm Nickel entweichenden Wasserstoffs in Fig. 7 gemeinsam mit der Magnetisierung über der Entgasungszeit aufgetragen. Die Möglichkeit, durch geeignete Wahl des Ordinatenmaßstabes beide Kurven zufriedenstellend zur Deckung zu bringen, ist ein Hinweis darauf, daß die Abnahme der Magnetisierung annähernd proportional dem gelösten Wasserstoffvolumen ist. Daraus

läßt sich entnehmen, daß der Wasserstoff im wesentlichen vom Gitter aufgenommen und nicht nur in Poren angesammelt war.

Aus dem Wert der Endvolumina ergeben sich rund 126 cm^3 pro Gramm Nickel desorbierten Wasserstoffs bei Normalbedingungen, d.h. es entfallen bei unseren Proben (vgl. Fußnote 2 auf S. 367) etwa 0,7 Atome Wasserstoff auf 1 Atom Nickel. Dieser Zahlenwert erinnert einerseits an die Wasserstoffaufnahme-fähigkeit des Palladiums (l. c.), andererseits an

über dem Atomverhältnis H:Ni angetragen und damit der über einen großen Bereich lineare Abfall des Magnetismus des Nickels mit zunehmender Wasserstoffbeladung gezeigt. Die Abweichung vom durchgehend linearen Verlauf ist vermutlich auf Entgasungshemmungen an der Oberfläche zurückzuführen (man beachte die etwas tiefere Lage der Volumenmeßpunkte im Vergleich mit der Magnetisierungskurve in Fig. 7).

3. Schlußbemerkung

Obwohl die Desorption im Falle des Nickels bereits unterhalb der Zimmertemperatur erfolgt, ist die Analogie zu den Verhältnissen beim Palladium in vieler Hinsicht auffallend. Man kann daher den Verlust des Magnetismus auch beim Nickel durch Auffüllung der $3d$ -Schale mit dem Elektron des Wasserstoffatoms deuten.

Weiterhin läßt die bei der Beladung auftretende, im Vergleich mit Palladium instabile und größere Gitteraufweitung (6% gegenüber 3,5%, wohl auf der kleineren Gitterkonstante des Ni beruhend) an eine Änderung des Austauschintegrals und eine dadurch bedingte Abnahme des Ferromagnetismus denken.

Herrn Professor GERLACH hat der eine von uns (H. J. B.) für sein seit Jahren gezeigtes Interesse an der Frage der Beeinflußbarkeit des Magnetismus durch Wasserstoff zu danken.

Herrn Professor FAESSLER und Herrn Professor FRAUNBERGER sind wir für wertvolle Diskussion sehr verbunden.

Lehrstuhl für Theoretische Kernphysik der Universität Freiburg i. Br.

Die Kernpolarisation in Mesonenatomen bei kugelsymmetrischen Mesonenzuständen

Von

WALTER GREINER

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 15. Juni 1961)

Die Polarisation des Atomkerns durch das in einem Mesonenatom um den Kern umlaufende Myon wird berechnet. Der Kern wird durch das hydrodynamische Modell von JENSEN und STEINWEDEL beschrieben. Die Rechnungen werden auf kugelsymmetrische Mesonenzustände beschränkt.

Die im Rahmen des Jensen-Steinwedel-Modells berechnete Kollektivpolarisation des Kerns verursacht bei Pb eine Verschiebung des $1s_{1/2}$ -Terms des Mesonenatoms um etwa 1 keV; sie darf also sicher für die Diskussion der Energiet Terme des Mesonenatoms vernachlässigt werden. Für die höher gelegenen kugelsymmetrischen Terme wie $1p_{3/2}$ und $2s_{1/2}$ nimmt der Effekt rasch ab. Für die im Rahmen des hydrodynamischen Modells nicht erfaßte Einteilchenpolarisation findet man mit Hilfe der von DEMEUR und JOACHAIN für das Deuteron durchgeführten Rechnungen weniger als 100 eV.

1. Einleitung

Wegen der kleinen Bahnradialen in einem Mesonenatom sind bei der Wechselwirkung zwischen Myon und Kern noch die inneren Freiheitsgrade des Kerns zu berücksichtigen. Wie dies im einzelnen geschieht, ist natürlich eine Frage des benutzten Kernmodells. In einer sehr pauschalen Weise kann die Einwirkung des Mesons auf den Kern im Rahmen des Jensen-Steinwedel-Modells¹ geschehen: Das in Kernnähe befindliche Myon entmischt Protonen- und Neutronenflüssigkeit, so daß eine Abänderung des Potentials gegenüber dem Potential des gewöhnlichen Elektronenatoms entsteht. Diese — allein durch die Anwesenheit des Mesons bedingte — Veränderung des Potentials führt natürlich zu Energieverschiebungen relativ zu den Niveaus, welche man in einer einfachen Theorie ohne Berücksichtigung der inneren Freiheitsgrade des Kerns erhält. Die Berechnung der durch diesen Polarisierungseffekt bedingten Niveauverschiebung des Mesonenatoms ist das Ziel dieser Arbeit.

Für die Niveauverschiebung infolge Kernpolarisation bewegen sich die Abschätzungen für den $1s$ -Term zwischen 16 und 180 keV bei Pb². Da die durch große Quadrupolmomente bedingte Feinstrukturaufspaltung

¹ STEINWEDEL, H., u. J. H. D. JENSEN: Z. Naturforsch. **5a**, 413 (1950).

² HILL, D. L., and K. W. FORD: Phys. Rev. **94**, 1617 (1954).

des Spektrums bei schweren Kernen in der Größenordnung von 50 keV liegt, verlangt die theoretische Analyse des Mesonenspektrums verbindlichere Zahlenangaben.

Die in der Arbeit durchgeführten Rechnungen sind in zweierlei Hinsicht zu ergänzen: Die Erweiterung auf nichtkugelsymmetrische Mesonenzustände unter Zulassung einer Oberflächendeformation des Kerns* und die Berücksichtigung der Einteilchenpolarisation. Für diese ist am Ende der Arbeit eine Abschätzung angegeben.

2. Die formale Theorie der Kernpolarisation

COOPER und HENLEY³ haben bereits 1954 die Ansätze für eine formale Theorie der Kernpolarisation bei μ -Mesonenatomen gegeben. Zur Lösung der für das Gesamtsystem Meson—Kern geforderten Wellengleichung

$$(T_\mu + H_N + H_W) \Psi = E \Psi \quad (1)$$

mit

$$H_W = \sum_j^Z - \frac{e^2}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}_j|} \quad (2)$$

wird der Lösungsansatz

$$\Psi(\mathbf{r}, \mathbf{R}_j) = \mathbf{X}(\mathbf{R}_j) \cdot \Phi(\mathbf{r}) \quad (3)$$

gefordert. Wir ändern nun das formale Schema der genannten Autoren so^{*} ab, daß der Übergang zu einem speziellen Kernmodell leicht möglich wird. Dazu führen wir in (1) nacheinander die Operationen $\langle \mathbf{X}, \dots \rangle$ und $\langle \Phi, \dots \rangle$ durch. Es folgen unter Beachtung von

$$\langle \mathbf{X}, \mathbf{X} \rangle = \langle \Phi, \Phi \rangle = 1 \quad (4)$$

die Gleichungen

$$(T_\mu + V(\mathbf{r})) \Phi = (E - E^{(N)}) \Phi, \quad (5a)$$

$$(H_N + \langle \Phi | H_W - V(\mathbf{r}) | \Phi \rangle) \mathbf{X} = E^{(N)} \mathbf{X}, \quad (5b)$$

$$V(\mathbf{r}) = \langle \mathbf{X} | H_W | \mathbf{X} \rangle. \quad (5c)$$

Die miteinander verkoppelten Gln. (5) gelten exakt. Der Zustand \mathbf{X} des Kerns hat Einfluß auf die Wechselwirkung $V(\mathbf{r})$ des Myons mit dem Kern und erscheint deshalb in der Wellengleichung (5a) des Mesons, dessen Zustand Φ er mitbestimmt. Dieser erscheint wiederum in der Wellengleichung (5b) des Kerns und gewinnt so Einfluß auf \mathbf{X} .

Zur Berechnung der durch den Polarisierungseffekt bedingten Energieverschiebung denken wir uns zunächst den Einfluß des Mesons auf den Kern vernachlässigt, d. h. der Kern befinde sich im Grundzustand $\mathbf{X}^{(0)}$ und

* Eine klassische Abschätzung des durch das induzierte Quadrupolmoment entstehenden Polarisierungseffektes erscheint demnächst.

³ COOPER, L. N., and E. M. HENLEY: Phys. Rev. **92**, 801 (1953).

das Gesamtsystem wird — wie bei COOPER und HENLEY — durch die entkoppelten Gleichungen

$$(T_\mu + V^{(0)}(\mathbf{r})) \Phi^{(0)} = (E_0 - E_0^{(N)}) \Phi^{(0)}, \quad (6a)$$

$$H_N \mathbf{X}^{(0)} = E_0^{(N)} \mathbf{X}^{(0)}, \quad (6b)$$

$$V^{(0)}(\mathbf{r}) = \langle \mathbf{X}^{(0)} | H_W | \mathbf{X}^{(0)} \rangle \quad (6c)$$

beschrieben. Die gesuchte Energiedifferenz beträgt dann

$$\Delta E = E - E_0 = (E - E^{(N)}) - (E_0 - E_0^{(N)}) + E^{(N)} - E_0^{(N)}. \quad (7)$$

Die zweite Schreibweise betont die Zusammensetzung von ΔE aus den Energiedifferenzen von Meson und Kern.

In praxi wird man die Gln. (6) als Ausgangspunkt eines sukzessiven Näherungsverfahrens wählen, d. h. man wird die Zustände $\mathbf{X}^{(0)}$, $\Phi^{(0)}$ sowie die Energien E_0 und $E_0^{(N)}$ als Größen „nullter Ordnung“ ansehen und mit ihrer Hilfe die Gln. (5) in „erster Näherung“ lösen. Darauf kommen wir noch zurück.

Unser nächstes Ziel ist die Spezialisierung von (5 b) auf ein konkretes Kernmodell.

3. Die Kernpolarisation im Jensen-Steinwedel-Modell

Verzichten wir auf individuelle Kerneigenschaften*, so können wir zu einer pauschalen Beschreibung der Polarisation das von J. H. D. JENSEN und H. STEINWEDEL angegebene hydrodynamische Bild des Kernes benutzen: Das kernnahe Myon entmischt die mit Rückstellkräften aneinander gekoppelten „Protonen“- und „Neutronenflüssigkeit“. Im einzelnen bilden die Protonendichte $\varrho_P(\mathbf{r})$ und Neutronendichte $\varrho_N(\mathbf{r})$ zusammen die örtlich konstante Nukleonendichte**

$$\varrho_0 = \varrho_P(\mathbf{r}) + \varrho_N(\mathbf{r}) = \frac{A}{\frac{4\pi}{3} R^3}. \quad (8)$$

Die infolge der Entmischung von Protonen- und Neutronenflüssigkeit *zusätzlich* auftretende Energiedichte ist

$$\varepsilon = K \frac{(\varrho_N - \varrho_P)^2}{\varrho_0} = K \frac{(2\varrho_P - \varrho_0)^2}{\varrho_0}, \quad (9)$$

wobei $K = 20 \text{ MeV}$ die in dem Anteil $K(N - Z)^2/A^2$ der Bindungsenergie je Nukleon auftretende Konstante ist.

* Die Einteilchen-Kernpolarisation wird später abgeschätzt.

** Bei JENSEN und STEINWEDEL werden für die beiden Kernflüssigkeiten hydrodynamische Gleichungen aufgestellt, weswegen ϱ_P und ϱ_N örtlich und zeitlich veränderlich sind.

Die — in unserem Fall durch das Myon bedingte — lokale Erhöhung von ϱ_P geschieht gegen die aus ε herleitbare Rückstellkraft $\mathfrak{F} = -\text{grad } \varepsilon$. Mit (8) und (9) folgt

$$\mathfrak{F} = \frac{4K}{\varrho_0} (\varrho_N - \varrho_P) \text{grad } \varrho_P. \quad (10)$$

Ist keine Entmischung vorhanden, so verschwinden ε und \mathfrak{F} . Das gewählte Modell bedingt eine Beschreibung der Kerneigenschaften mit Hilfe der Nukleonendichten ϱ_P und ϱ_N . Von den das Gesamtsystem Meson—Kern beschreibenden Gln. (5) ist daher die letzte in

$$V(\mathbf{r}) = -e^2 \int \frac{\varrho_P(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\tau' \quad (11)$$

umzuschreiben. Die für den Kern zuständige Gl. (5b) ist offensichtlich durch eine Differentialgleichung für ϱ_P zu ersetzen. Nun wird die lokale Protonendichte durch den Entmischungsgrad der Nukleonенflüssigkeiten, die gegenseitige Protonenabstoßung sowie die Anwesenheit des Mesons bestimmt. Die gewünschte Differentialgleichung erhält man bequem mit Hilfe des für das Gesamtsystem Meson—Kern formulierten Hamiltonschen Prinzips, wobei ϱ_P variiert wird. Da die kinetische Energie des Mesons nicht explizite von der Protonendichte abhängt, ist

$$\delta \left[\int \varepsilon d\tau + \frac{e^2}{2} \int \frac{\varrho_P(\mathbf{r}) \varrho_P(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\tau d\tau' - e^2 \int \frac{\varrho_P(\mathbf{r}) |\Phi(\mathbf{r}')|^2}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\tau d\tau' \right] = 0 \quad (12)$$

zu fordern, wobei die einzelnen Summanden der Reihe nach die oben aufgezählten, die Protonendichte bestimmenden Einflüsse berücksichtigen. Die Variation nach ϱ_P liefert unter Berücksichtigung von (11)

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial \varrho_P} - V(\mathbf{r}) = e^2 \int \frac{|\Phi(\mathbf{r}')|^2}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\tau', \quad (13)$$

woraus unter Anwendung des Δ -Operators

$$\Delta \frac{\partial \varepsilon}{\partial \varrho_P} - 4\pi e^2 \varrho_P = -4\pi e^2 |\Phi(\mathbf{r})|^2 \quad (14)$$

folgt. Nun ist unter Beachtung von (8) und (9)

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial \varrho_P} = 4K \frac{(2\varrho_P - \varrho_0)}{\varrho_0} \quad \text{also auch} \quad \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial \varrho_P^2} = \frac{8K}{\varrho_0},$$

so daß

$$\Delta \frac{\partial \varepsilon}{\partial \varrho_P} = \text{div} \left(\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial \varrho_P^2} \text{grad } \varrho_P \right) = \frac{8K}{\varrho_0} \Delta \varrho_P$$

gilt. Wird dies in (14) eingesetzt, so erhalten wir die gesuchte Differentialgleichung für $\varrho_P(\mathbf{r})$. Die auf das hydrodynamische Kernmodell

spezialisierten Gln. (5) lauten damit

$$(T_\mu + V(r)) \Phi = (E - E^{(N)}) \Phi = W \Phi, \quad (15a)$$

$$4\varrho_P(r) - D^2\varrho_P(r) = -\frac{4\pi e^2\varrho_0}{8K} |\Phi(r)|^2; \quad D^2 = \frac{4\pi e^2\varrho_0}{8K}, \quad (15b)$$

$$V(r) = -e^2 \int \frac{\varrho_P(r')}{|r-r'|} d\tau'. \quad (15c)$$

Die Verkopplung der Gleichungen spiegelt die wechselseitige Beeinflussung von Meson und Kern wider: Der Mesonenzustand Φ beeinflusst über (15b) die Protonendichte $\varrho_P(r)$, welche ihrerseits über (15c) das für das Myon zuständige Potential V bestimmt.

Vernachlässigt man in einer vereinfachten Theorie die wechselseitige Abstoßung der Protonen, so verschwindet in der Energiebilanz (12) der zweite Beitrag, welchem in (15b) der Term $D^2\varrho_P(r)$ entspricht. Formal kann man daher die Nichtberücksichtigung der Protonenabstoßung durch die Festsetzung $D=0$ erreichen.

Die infolge des Polarisierungseffektes auftretende Energieverschiebung ist durch den Unterschied in den Protonendichten $\varrho_P(r)$ und $\varrho_P^{(0)}(r)$ bei Anwesenheit und Abwesenheit des Mesons bedingt. Zunächst folgt aus (15b) die Lösung

$$\varrho_P(r) = \frac{e^2\varrho_0}{8K} \int \frac{e^{-D|r-r'|}}{|r-r'|} |\Phi(r')|^2 d\tau' + \text{Const} \cdot \frac{\sin Dr}{r}, \quad (16)$$

in welcher wir $\Phi(r)$ zunächst als bekannt voraussetzen. Bei Abwesenheit des Mesons ($\Phi(r) \equiv 0$) folgt daraus die kugelsymmetrische Lösung

$$\varrho_P^{(0)}(r) = \text{Const} \times \frac{\sin Dr}{r} \quad (17)$$

für die Protonendichte, welche bei vernachlässigbarer Protonenabstoßung in eine Konstante übergeht. Die Normierungsforderung — R bezeichnet den Kernradius —

$$\int_{\text{Kern}} \varrho_P(r) d\tau = \int_{\text{Kern}} \varrho_P^{(0)}(r) d\tau = Z \quad (18)$$

bestimmt die in (16) und (17) auftretende Konstante. Mithin bedingt das Myon den durch

$$\eta(r) = \varrho_P(r) - \varrho_P^{(0)}(r) \quad (19)$$

gegebenen Unterschied in der Protonendichte. Wegen (18) folgt

$$\int_{\text{Kern}} \eta(r) d\tau = 0, \quad (20)$$

d.h. $\eta(r)$ beschreibt eine Protonenverschiebung. Wir bezeichnen $\eta(r)$ als *Polarisationsdichte* und

$$U(r) = -e^2 \int_{\text{Kern}} \frac{\eta(r')}{|r-r'|} d\tau' \quad (21)$$

als *Polarisationspotential*. Dieses tritt zu dem ohne Myon allein vorhandenem Potential

$$V^{(0)}(\mathbf{r}) = -e^2 \int \frac{\varrho_P^{(0)}(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\tau' \quad (22)$$

hinzu. In seiner physikalischen Bedeutung korrespondiert $V^{(0)}(\mathbf{r})$ dem in den Gln. (6) auftretenden — dort ebenfalls mit $V^{(0)}(\mathbf{r})$ bezeichneten — Potential.

Da (16) den Mesonenzustand $\Phi(\mathbf{r})$ enthält, hat die Lösung nur formale Bedeutung. In praxi wird man daher zur Berechnung von $\varrho_P(\mathbf{r})$ eine geeignete Ausgangslösung — etwa die zu $V^{(0)}(\mathbf{r})$ gehörige Wellenfunktion $\Phi^{(0)}$ vorgeben müssen. $\Phi^{(0)}(\mathbf{r})$ hat dann dieselbe Bedeutung wie die in den Gln. (6) auftretende Mesonenfunktion $\Phi^{(0)}(\mathbf{r})$.

Die durch den Polarisierungseffekt hervorgerufene Energieänderung des Gesamtsystems ist offensichtlich durch

$$\Delta E = \int (\varepsilon - \varepsilon^{(0)}) d\tau + \frac{e^2}{2} \int \frac{\varrho_P(\mathbf{r}) \varrho_P(\mathbf{r}') - \varrho_P^{(0)}(\mathbf{r}) \varrho_P^{(0)}(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\tau d\tau' + \left\{ \begin{aligned} &+ \int [\Phi^* H_\mu \Phi - \Phi^{(0)*} H_\mu^{(0)} \Phi^{(0)}] d\tau \end{aligned} \right\} \quad (23)$$

gegeben. Wie früher ist bei den mit (0) indizierten Größen der Polarisierungseffekt nicht berücksichtigt. Insbesondere ist [vgl. (9)]

$$\varepsilon^{(0)} = K \frac{(2\varrho_P^{(0)} - \varrho_0)^2}{\varrho_0} \quad (24a)$$

und

$$\varepsilon = K \frac{[2(\varrho_P^{(0)} + \eta) - \varrho_0]^2}{\varrho_0} \quad (24b)$$

und

$$H_\mu^{(0)} = T_\mu + V^{(0)}(\mathbf{r}) \quad (25a)$$

und

$$H_\mu = T_\mu + V^{(0)}(\mathbf{r}) + U(\mathbf{r}). \quad (25b)$$

Die in (23) notierte Energiedifferenz entspricht genau dem Schema der Gln. (7): Die ersten beiden Terme von (23) sind dort mit $E^{(N)} - E_0^{(N)}$ bezeichnet; der Rest entspricht der aus der Mesonenwellengleichung (5a) und (6a) resultierenden Energiedifferenz $(E - E^{(N)}) - (E_0 - E_0^{(N)})$.

Unter Beachtung von (24) ist also

$$E^{(N)} - E_0^{(N)} = \left\{ \begin{aligned} &\left[\frac{8K}{\varrho_0} \int \varrho_P^{(0)} \eta d\tau + e^2 \int \frac{\varrho_P^{(0)}(\mathbf{r}) \eta(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\tau d\tau' \right] + \\ &+ \left[\frac{4K}{\varrho_0} \int \eta^2 d\tau + \frac{e^2}{2} \int \frac{\eta(\mathbf{r}) \eta(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\tau d\tau' \right] - 4K \int \eta(\mathbf{r}) d\tau, \end{aligned} \right\} \quad (26)$$

wobei der letzte Term wegen (20) verschwindet. Für den ersten Term gilt

$$\frac{8K}{\varrho_0} \int \varrho_P^{(0)}(\mathbf{r}) \eta(\mathbf{r}) d\tau = \frac{8K}{\varrho_0} \cdot \frac{1}{4\pi e^2} \int \varrho_P^{(0)}(\mathbf{r}) \Delta U(\mathbf{r}) d\tau.$$

Die Anwendung des Greenschen Satzes sowie die aus (15 b) für $\varrho_P^{(0)}(\mathbf{r})$ folgende Aussage

$$\Delta \varrho_P^{(0)}(\mathbf{r}) = D^2 \varrho_P^{(0)}(\mathbf{r}); \quad D^2 = \frac{4\pi e^2 \varrho_0}{8K} \quad (27)$$

führt dann zu

$$\begin{aligned} \frac{8K}{\varrho_0} \cdot \frac{1}{4\pi e^2} \int \varrho_P^{(0)} \Delta U \, d\tau &= \frac{8K}{\varrho_0} \cdot \frac{1}{4\pi e^2} \int U(\mathbf{r}) \Delta \varrho_P^{(0)}(\mathbf{r}) \, d\tau \\ &= \int U(\mathbf{r}) \varrho_P^{(0)}(\mathbf{r}) \, d\tau. \end{aligned}$$

Wegen

$$e^2 \int \frac{\varrho_P^{(0)}(\mathbf{r}) \eta(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \, d\tau \, d\tau' = - \int \varrho_P^{(0)}(\mathbf{r}) U(\mathbf{r}) \, d\tau$$

heben sich also die ersten Terme weg.

Ebenfalls mit Hilfe des Greenschen Satzes und (15 b) kann der nächste Term in

$$\frac{4K}{\varrho_0} \int \eta^2(\mathbf{r}) \, d\tau = \frac{1}{2} \int \eta(\mathbf{r}) U(\mathbf{r}) \, d\tau - \frac{1}{2} \int \Phi^* U(\mathbf{r}) \Phi \, d\tau$$

umgeschrieben werden. Wird schließlich das Polarisationspotential in den nächsten Energiebeitrag eingeführt, so bleibt lediglich

$$E^{(N)} - E_0^{(N)} = -\frac{1}{2} \int \Phi^*(\mathbf{r}) U(\mathbf{r}) \Phi(\mathbf{r}) \, d\tau \quad (28)$$

und die gesuchte Energieverschiebung reduziert sich auf

$$\Delta E = -\frac{1}{2} \langle \Phi | U | \Phi \rangle + \langle \Phi | T_\mu + V^{(0)} + U | \Phi \rangle - \langle \Phi^{(0)} | T_\mu + V^{(0)} | \Phi^{(0)} \rangle, \quad (29)$$

wobei die explizite Form der in (25) notierten Hamilton-Operatoren benutzt ist.

Der Energieausdruck (29) gilt exakt. Wegen der wechselseitigen Verkopplung von $\Phi(\mathbf{r})$ und $U(\mathbf{r})$ müssen in praxi Näherungsmethoden zur Berechnung von ΔE verwendet werden. Die anschließend durchgeführte Näherungsrechnung beruht auf der Voraussetzung, daß das Polarisationspotential $U(\mathbf{r})$ als Störung der in „nullter Näherung“ vorgegebenen Wechselwirkung $V^{(0)}(\mathbf{r})$ angesehen werden darf. Gehört zu $V^{(0)}(\mathbf{r})$ der Mesonenzustand $\Phi_m^{(0)}$, dann bewirkt $U(\mathbf{r})$ den gestörten Zustand

$$\Phi = \Phi_m^{(0)} + \sum_{k \neq m} c_k \Phi_k^{(0)} \equiv \Phi_m^{(0)} + \Phi^{(1)}, \quad (30)$$

wobei die Entwicklungskoeffizienten c_k die Beimischungen weiterer Quantenzustände $\Phi_k^{(0)}$ bestimmen. Die Beschränkung auf lineare Terme in $\Phi^{(1)}$ und U und unter Beachtung der Orthogonalität $\langle \Phi_m^{(0)}, \Phi^{(1)} \rangle = 0$ folgt dann mit (29) und (30) das einfache Resultat

$$\Delta E = \frac{1}{2} \langle \Phi_m^{(0)} | U | \Phi_m^{(0)} \rangle. \quad (31)$$

Zur Auswertung von (31) wird man — mit (15 b) als Ausgangsgleichung — das Polarisationspotential im Rahmen einer sukzessiven Approximation berechnen, so daß U als Ergebnis einer ersten sukzessiven Approximation erhalten wird (vgl. später). Mithin entsteht die Energieverschiebung — in Übereinstimmung mit der formalen Theorie — in zweiter Näherung.

4. Die praktische Durchführung der Theorie

Die Berechnung von ΔE nimmt ihren Ausgangspunkt von Gl. (15 b): Man berechnet in einem ersten Schritt die Protonenverteilung $\varrho_P^{(0)}(r)$ bei Abwesenheit des Mesons ($\Phi \equiv 0$) und findet mit den Gln. (17) und (18)

$$\varrho_P^{(0)}(r) = \frac{Z}{4\pi \left(\frac{R}{D} \cos DR - \frac{1}{D^2} \sin DR \right)} \times \frac{\sin Dr}{r}. \quad (32)$$

Anschließend setzt man in (15 b) den durch das Polarisationspotential nicht gestörten Mesonenzustand $\Phi_m^{(0)}$ ein und errechnet mit seiner Hilfe in erster Näherung die Abänderung der Protonendichte $\varrho_P^{(0)}$ in $\varrho_P^{(1)}$. Nach (19) folgt dann die Polarisationsdichte

$$\eta(r) = \varrho_P^{(1)}(r) - \varrho_P^{(0)}(r) \quad (33)$$

und anschließend mit Hilfe von (21) das Polarisationspotential $U(r)$, so daß ΔE mit (31) berechnet werden kann. Wegen der Kernnähe des Mesons im 1s-Zustand wird man die Rechnung zunächst für diesen durchführen, also $\Phi_m^{(0)} \equiv \Phi_{1s}^{(0)}$ setzen.

Nun erhält man die Mesonenwellenfunktionen aus den entsprechenden Elektronenwellenfunktionen, indem man die Elektronenmasse durch die Myonenmasse ersetzt*. Die dabei implizierte Voraussetzung des punktförmigen Atomkernes trifft bei Mesonenatomen für $Z \geq 30$ nicht mehr zu, weshalb die wasserstoffähnlichen Wellenfunktionen durch die im allgemeinen nur numerisch vorliegenden, für eine vorgegebene Wechselwirkung $V^{(0)}(r)$ [vgl. (22)] gültigen Wellenfunktionen zu ersetzen sind. Überdies sind mit wachsendem Z die relativistischen Effekte zu berücksichtigen: Das Myon ist ein „schweres Dirac-Teilchen“, weshalb seine Beschreibung mit Hilfe der Dirac-Gleichung — oder in Näherung mit der Pauli-Gleichung — zu geschehen hat**. Trotz dieser Bedenken gegen die gewöhnlichen Wasserstoffeigenfunktionen seien sie zunächst für die Weiterführung der Rechnung benutzt. Später wird für den

* Da wir uns vorzugsweise für schwere Kerne interessieren, sei die Kernmitbewegung vernachlässigt.

** Da die Umlaufgeschwindigkeit eines auf einer Bohrschen Bahn um den Kern umlaufenden Teilchens unabhängig von seiner Masse ist, bedingen die relativistischen Effekte dieselben Relativkorrekturen (bei punktförmigen Kernen) wie bei wasserstoffähnlichen Elektronenatomen.

Pb-Kern mit Hilfe der dafür tabuliert vorliegenden Dirac-Wellenfunktionen der begangene Fehler abgeschätzt. Wir setzen also

$$\left. \begin{aligned} \Phi_{1s}^{(0)} &= \pi^{-\frac{1}{2}} \left(\frac{Z}{a_0} \right)^{\frac{3}{2}} e^{-Z/a_0} = \pi^{-\frac{1}{2}} \lambda^{\frac{3}{2}} e^{-\lambda r}, \\ \lambda &= \frac{Z}{a_0}, \quad a_0 = \frac{\hbar^2}{\mu e^2}. \end{aligned} \right\} \quad (34)$$

a_0 ist der mit der Myonenmasse μ gebildete Bahnradius der 1s-Bahn. Einsetzen von (34) in (16) liefert

$$\left. \begin{aligned} \varrho_P^{(1)}(r) &= \frac{e^2 \varrho_0}{8K} \frac{\lambda^3}{\pi} \int \frac{e^{-D\sqrt{r^2 + r'^2 - 2rr' \cos \Theta}}}{\sqrt{r^2 + r'^2 - 2rr' \cos \Theta}} \times \\ &\quad \times e^{-2\lambda r'} r'^2 dr' \sin \Theta d\Theta d\varphi + C \frac{\sin Dr}{r} \end{aligned} \right\} \quad (35)$$

und nach längerer Rechnung findet man

$$\left. \begin{aligned} \varrho_P^{(1)}(r) &= \frac{e^2 \varrho_0}{8K} \frac{\lambda^3}{\pi} \times \\ &\quad \times \frac{1}{r} \left\{ e^{-Dr} \left(\frac{16\lambda}{(D^2 - 4\lambda^2)^2} \right) - e^{-2\lambda r} \left(\frac{4r}{(4\lambda^2 - D^2)} + \frac{16\lambda}{(4\lambda^2 - D^2)^2} \right) \right\} + \\ &\quad + \text{Const} \times \frac{\sin Dr}{r}. \end{aligned} \right\} \quad (36)$$

Die Kugelsymmetrie von $\varrho_P^{(1)}(r)$ ist durch den die Polarisation verursachenden kugelsymmetrischen Mesonenzustand (34) bedingt. Die Konstante in (36) ermitteln wir aus der Randbedingung (18) und erhalten nach einiger Rechnung

$$\left. \begin{aligned} \varrho_P^{(1)}(r) &= \frac{e^2 \varrho_0}{8K} \lambda^3 \left\{ \frac{16\lambda}{(D^2 - 4\lambda^2)^2} \left(\frac{e^{-Dr}}{r} - \frac{e^{-2\lambda r}}{r} \right) - \frac{4}{(4\lambda^2 - D^2)} e^{-2\lambda r} \right\} + \\ &\quad + \left\{ \frac{Z}{4\pi \left(\frac{R}{D} \cos DR - \frac{1}{D^2} \sin DR \right)} - \frac{e^2 \varrho_0}{8K} \lambda^3 \left[\frac{16\lambda}{(D^2 - 4\lambda^2)^2} \left(-\frac{R}{D} e^{-DR} - \right. \right. \right. \\ &\quad \left. \left. - \frac{1}{D^2} e^{-DR} + \frac{1}{D^2} + \frac{R}{2\lambda} e^{-2\lambda R} + \frac{1}{(2\lambda)^2} e^{-2\lambda R} - \frac{1}{(2\lambda)^2} \right) + \right. \\ &\quad \left. \left. + \frac{4}{(4\lambda^2 - D^2)^2} \left(\frac{R^2}{2\lambda} e^{-2\lambda R} + \frac{2R}{(2\lambda)^2} e^{-2\lambda R} + \frac{2}{(2\lambda)^3} e^{-2\lambda R} - \frac{2}{(2\lambda)^3} \right) \right] \times \right. \\ &\quad \left. \times \left[-\frac{1}{D^2} \sin Dr + \frac{R}{D} \cos DR \right]^{-1} \right\} \times \frac{\sin Dr}{r}. \end{aligned} \right\} \quad (37)$$

Daraus ergibt sich nach (33)

$$\eta(r) = \frac{e^2 \varrho_0}{8K} \lambda^3 \left\{ \frac{16\lambda}{(D^2 - 4\lambda^2)^2} \left[\frac{e^{-Dr}}{r} - \frac{e^{-2\lambda r}}{r} \right] - \frac{4e^{-2\lambda r}}{(4\lambda^2 - D^2)} - C \frac{\sin Dr}{r} \right\}, \quad (38)$$

wobei C eine Abkürzung für folgende Konstante ist:

$$C = \left\{ \frac{16\lambda}{(D^2 - 4\lambda^2)^2} \left[-\frac{R}{D} e^{-DR} + \frac{1}{D^2} (1 - e^{-DR}) + \frac{R}{2\lambda} e^{-2\lambda R} + \frac{1}{(2\lambda)^2} e^{-2\lambda R} - \frac{1}{(2\lambda)^2} \right] + \frac{4}{(4\lambda^2 - D^2)} \times \right. \\ \left. \times \left[\frac{R^2}{(2\lambda)} e^{-2\lambda R} + \frac{2R}{(2\lambda)^2} e^{-2\lambda R} + \frac{2}{(2\lambda)^3} e^{-2\lambda R} - \frac{2}{(2\lambda)^3} \right] \right\} \times \\ \times \left\{ \frac{R}{D} \cos DR - \frac{1}{D^2} \sin DR \right\}^{-1}. \quad (39)$$

Im Grenzfall $D \rightarrow 0$ erhält man aus (38) $\eta'(r)$, die Polarisationsdichte ohne Berücksichtigung der Protonenabstoßung

$$\eta'(r) = \frac{e^2 q_0}{8K} \lambda^3 \left\{ \frac{1}{r} - \frac{e^{-2\lambda r}}{r} - \lambda e^{-2\lambda r} - \right. \\ \left. - \frac{3}{2} \left[\frac{R^2}{2} (1 - e^{-2\lambda R}) - \frac{R}{\lambda} e^{-2\lambda R} + \frac{2}{(2\lambda)^2} (e^{-2\lambda R} - 1) \right] \right\} \frac{1}{R^3}. \quad (40)$$

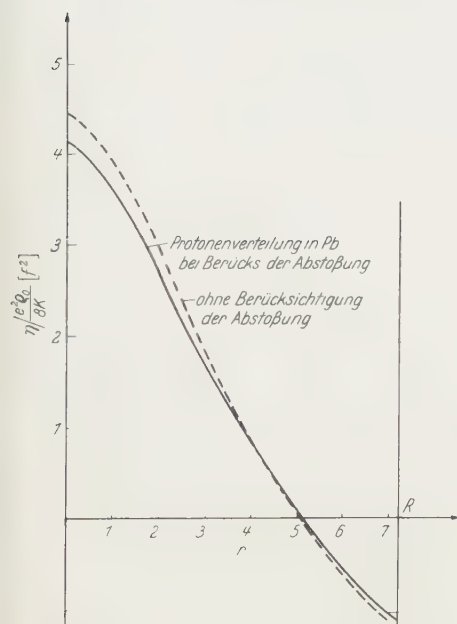


Fig. 1. Verlauf der Polarisationsdichte $\eta(r)$ in Pb für den 1s-Mesonenzustand. — Bei Berücksichtigung der Protonenabstoßung; --- ohne Berücksichtigung derselben

Die Proportionalität der Polarisationsdichte zu $1/K$ bedeutet, daß die Entmischung der Kernflüssigkeiten durch die Mesonenwolke um so größer ist, je kleiner die Rückstellkräfte zwischen Protonen- und Neutronenflüssigkeiten sind. In Fig. 1 sind (38) und (40) für den Pb-Kern graphisch ausgewertet. Das Anwachsen der Polarisationsdichte zum Kerninneren hin läßt sich anschaulich

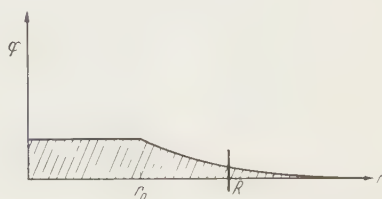


Fig. 2. Verlauf des Potentials $\varphi(r)$ einer homogen geladenen Kugelschale vom Radius $r_0 \cdot R = \text{Kernradius}$

verstehen: Betrachten wir beispielsweise die Mesonenwolke als eine Kugelschale mit dem Radius $r_0 < R$. Dann ist das Potential φ dieser

Schale für $r < r_0$ konstant und für $r > r_0$ proportional $1/r$ (vgl. Fig. 2). Nur im äußeren Bereich ($r > r_0$) übt also die Kugelschale eine Kraftwirkung (Anziehung) auf die Protonen des Kerns aus. Das Ergebnis (38) ist ein integraler Effekt über solche mit verschiedenen Gewichten versehenen Kugelschalen im Kerninnern. Liegt die Kugelschale im Kernäußeren ($r_0 > R$), so wird überhaupt keine Einwirkung auf den Kern stattfinden. Wir haben also das Ergebnis, daß die Polarisationsdichte nur von der Anwesenheit des Mesons im Kerninnern herrührt. Mathematisch wird dies noch deutlich, wenn wir (40) für $\lambda R \ll 1$ untersuchen (Bohrscher Radius der Mesonenwolke \gg Kernradius):

$$\eta' \approx \frac{e^2 \varrho_0}{8K} \lambda^3 \left(\frac{2}{5} R^2 - \frac{2}{3} r^2 \right). \quad (41)$$

Also ist $\eta' \sim \lambda^3 \sim \Phi \Phi^*(0)$. Wandert also der Schwerpunkt der Mesonenwolke (ihr Bohrscher Radius) mit a_0/Z nach außen, dann nimmt die Polarisationsladung mit $(Z/a_0)^3$ ab.

Aus Fig. 1 geht weiterhin hervor, daß im Kerninnern $\eta'(r) > \eta(r)$, d. h. ohne Berücksichtigung der Protonenabstoßung ist die Polarisationsdichte größer als mit Protonenabstoßung, denn die gegenseitige Abstoßung der Protonen wirkt einer Anhäufung derselben entgegen. Wegen (20) muß die Polarisationsdichte (vgl. Fig. 1) am Kernrand negativ werden. Aus (24) erhält man unter Berücksichtigung der Kugelsymmetrie von durch Ausführen der Integration über die Winkel

$$U(r) = -e^2 \int \frac{\eta(r')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\tau' = -\frac{e^2 8\pi}{2r} \left\{ \int_0^r \eta r'^2 dr' + r \int_r^R \eta r' dr' \right\}. \quad (42)$$

Mit Hilfe von (20) erkennt man leicht, daß $U(r') = 0$ für $r' \geq R$: Nur im Kerninnern ist das Polarisationspotential für kugelsymmetrische Mesonenwolken von Null verschieden. Da $\eta(r)$ eine Verschiebungsdichte ist [vgl. (20)], so hat sich die Gesamtladung des Kernes nicht geändert. Nur diese bestimmt aber bei kugelsymmetrischer Ladungsverteilung im Kerninnern das Potential im Kernäußeren.

Unter Berücksichtigung von (38) erhalten wir aus (42)

$$U(r) = \frac{e^4 \varrho_0}{8K} 4\pi \lambda^3 \left\{ \frac{16\lambda}{(D^2 - 4\lambda^2)^2} \left[\frac{1}{D^2} \frac{(1 - e^{-Dr})}{r} - \frac{1}{(2\lambda)^2} \frac{(1 - e^{-2\lambda r})}{r} - \frac{e^{-DR}}{R} + \frac{e^{-2\lambda R}}{(2\lambda)} \right] - \frac{4}{(4\lambda^2 - D^2)} \left[-\frac{e^{-2\lambda r}}{(2\lambda)^2} + \frac{2}{(2\lambda)^3} \frac{(1 - e^{-2\lambda r})}{r} - \frac{R}{2\lambda} e^{-2\lambda R} - \frac{1}{(2\lambda)^2} e^{-2\lambda R} \right] - C \left[-\frac{1}{D^2} \frac{\sin Dr}{r} + \frac{R}{D} \cos DR \right] \right\} \quad (43)$$

und von (40)

$$\begin{aligned}
 U''(r) = -\frac{e^4 q_0}{8K} + 7\lambda^3 \left\{ -\frac{r}{2\lambda^3} - \frac{2}{(2\lambda)^2 \lambda^3} \left(1 - \frac{e^{-2\lambda r}}{r} \right) + \right. \\
 + \frac{1}{\lambda^2 (2\lambda)^2} e^{-2\lambda r} + \frac{r^2}{2\lambda^3 R^3} \left[\frac{R^2}{2} (1 + e^{-2\lambda R}) \right. \\
 + \frac{R}{\lambda} e^{-2\lambda R} + \frac{2}{(2\lambda)^2} e^{-2\lambda R} - \frac{2}{(2\lambda)^2} \Big] + \\
 \left. + \left[\frac{R}{\lambda^3} (1 - e^{-2\lambda R}) - \frac{3}{4\lambda^4} e^{-2\lambda R} - \frac{3}{4\lambda^5 R} e^{-2\lambda R} + \frac{3}{4\lambda^5} \right] \right\}. \quad (44)
 \end{aligned}$$

In Fig. 3 sind (43) und (44) graphisch ausgewertet. $U'(r)$ ist größer als $U(r)$. Das hat dieselbe Ursache wie das entsprechende Verhalten der Polarisationsdichten η' und η . Das Polarisationspotential erweist sich als negativ: Die Mesonen-niveaus werden also durch den Polarisierungseffekt nach unten verschoben. Dies ist schon in einem sehr naiven Bild zu verstehen: Wenn das Meson in das Kerninnere eindringt, schaart es die Protonen um sich und bewegt sich somit in einem tieferen Potential. Es wird dadurch fester gebunden.

Infolge der Kugelsymmetrie des Polarisationspotentials erhält der Mesonenzustand $\Phi_{1s}^{(0)}$ nur kugelsymmetrische Beimischungen. Zum Beweis notieren wir (30) unter Spezialisierung von $\Phi_m^{(0)} \equiv \Phi_{1s}^{(0)}$ ausführlich:

$$\Phi = \Phi_{1s}^{(0)} + \sum_{k \neq 1s} \frac{W_{k,1s}}{E_{1s}^{(0)} - E_k^{(0)}} \Phi_k^{(0)}, \quad (45a)$$

$$W_{k,1s} = \langle \Phi_k^{(0)} | U | \Phi_{1s}^{(0)} \rangle. \quad (45b)$$

Wegen der Kugelsymmetrie von U existieren also nur die zu $K=2s, 3s, \dots$ gehörigen Matrixelemente, so daß (45a)

$$\Phi = \Phi_{1s}^{(0)} + c_{2s} \Phi_{2s}^{(0)} + c_{3s} \Phi_{3s}^{(0)} + \dots \quad (46)$$

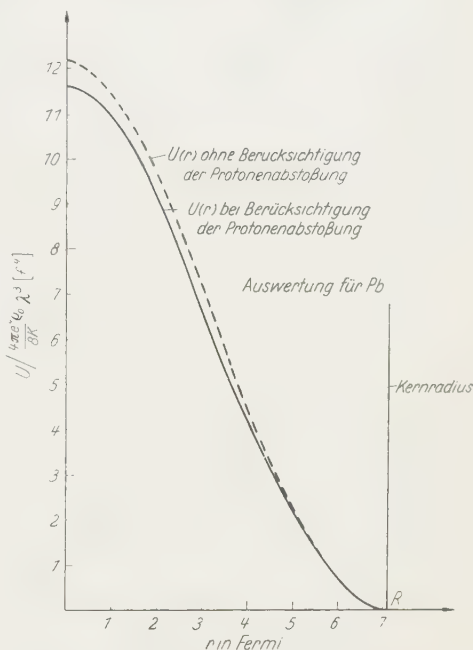


Fig. 3. Verlauf des Polarisationspotentials $U(r)$ in Pb für den 1s-Mesonenzustand

lautet. Im einzelnen ist dann

$$c_{2s} = \frac{\langle \Phi_{2s}^{(0)} | U | \Phi_{1s}^{(0)} \rangle}{(-3Z^2 e^2 / 8a_0)}, \quad c_{3s} = \frac{\langle \Phi_{3s}^{(0)} | U | \Phi_{1s}^{(0)} \rangle}{(-4Z^2 e^2 / 9a_0)} \quad (47)$$

und

$$\left. \begin{aligned} \Phi_{1s}^{(0)} &= \pi^{-\frac{1}{2}} \lambda^{\frac{3}{2}} e^{-\lambda r}, \\ \Phi_{2s}^{(0)} &= \frac{1}{2} \pi^{-\frac{1}{2}} \left(\frac{\lambda}{2}\right)^{\frac{3}{2}} (2 - \lambda r) e^{-\frac{\lambda}{2} r}, \\ \Phi_{3s}^{(0)} &= \pi^{-\frac{1}{2}} \left(\frac{\lambda}{3}\right)^{\frac{3}{2}} \left(1 - \frac{2}{3} \lambda r + \frac{2}{27} \lambda^2 r^2\right) e^{-\frac{\lambda}{3} r}. \end{aligned} \right\} \quad (48)$$

Die Beimischungskoeffizienten (47) wurden für verschiedene Kerne berechnet. Für Blei ist $c_{2s} = 6,9 \cdot 10^{-5}$, $c_{3s} = 3,0 \cdot 10^{-5}$. Die Änderung der Wellenfunktion durch das Polarisationspotential ist also gering.

Nach (31) erhalten wir für die Niveauverschiebung des Gesamtsystems Meson—Kern unter Berücksichtigung von (43)

$$\Delta E = -2\lambda^3 \frac{e^4 q_0}{8K} \int_0^R e^{-2\lambda r} \left\{ \frac{16\lambda}{(D^2 - 4\lambda^2)^2} \left[\frac{1}{D^2} \frac{(1 - e^{-Dr})}{r} - \frac{1}{(2\lambda)^2} \frac{(1 - e^{-2\lambda r})}{r} - \frac{e^{-DR}}{D} + \frac{e^{-2\lambda R}}{(2\lambda)} \right] - \frac{4}{(4\lambda^2 - D^2)} \times \right. \quad (49)$$

$$\left. \times \left[-\frac{e^{-2\lambda r}}{(2\lambda)^2} + \frac{2}{(2\lambda)^3} \frac{(1 - e^{-2\lambda r})}{r} - \frac{R}{(2\lambda)} e^{-2\lambda R} - \frac{e^{-2\lambda R}}{(2\lambda)^2} \right] - C \left[-\frac{1}{D^2} \frac{\sin Dr}{r} + \frac{1}{D} \cos DR \right] \right\} 4\pi r^2 dr.$$

Für den Fall $D \neq 0$ führt die Auswertung von (49) auf umfangreiche Rechnung. Deshalb wurde (49) mit Hilfe der elektronischen Rechenmaschine Z 22 ausgewertet. Für $D=0$ sind die rechentechnischen Schwierigkeiten (44) bereits erheblich kleiner. Wir erhalten

$$\Delta E' = -8\pi\lambda^3 \frac{e^4 q_0}{8K} \left\{ \left[\frac{R^3}{4\lambda} e^{-2\lambda R} + \frac{3R^2}{2(2\lambda)^2} e^{-2\lambda R} + \frac{3R}{(2\lambda)^3} e^{-2\lambda R} + \frac{3}{(2\lambda)^4} e^{-2\lambda R} - \frac{3}{(2\lambda)^4} \right] - \right. \quad (50)$$

$$\left. - \frac{2}{(2\lambda)^2} \left[-\frac{R}{(2\lambda)} e^{-2\lambda R} - \frac{1}{(2\lambda)^2} e^{-2\lambda R} + \frac{1}{(2\lambda)^2} \right] + \frac{2}{(2\lambda)^2} \left[-\frac{R}{(4\lambda)} e^{-4\lambda R} - \frac{1}{(4\lambda)^2} e^{-4\lambda R} + \frac{1}{(4\lambda)^2} \right] + \frac{\lambda}{(2\lambda)^2} \left[-\frac{R^2}{(4\lambda)} e^{-4\lambda R} - \frac{2R}{(4\lambda)^2} e^{-4\lambda R} - \frac{2}{(4\lambda)^3} e^{-4\lambda R} + \frac{2}{(4\lambda)^3} \right] + M \left[-\frac{R^4}{(2\lambda)} e^{-2\lambda R} - \frac{4R^3}{(2\lambda)^2} e^{-2\lambda R} - \frac{12R^2}{(2\lambda)^3} e^{-2\lambda R} - \frac{24R}{(2\lambda)^4} e^{-2\lambda R} - \frac{24}{(2\lambda)^5} e^{-2\lambda R} + \frac{24}{(2\lambda)^5} \right] + N \left[-\frac{R^2}{(2\lambda)} e^{-2\lambda R} - \frac{2R}{(2\lambda)^2} e^{-2\lambda R} - \frac{2}{(2\lambda)^3} e^{-2\lambda R} + \frac{2}{(2\lambda)^3} \right] \right\}.$$

Dabei bedeuten

$$\left. \begin{aligned} M &= \frac{1}{2R^3} \left[\frac{R^2}{2} (1 + e^{-2\lambda R}) + \frac{R}{\lambda} e^{-2\lambda R} + \frac{2}{(2\lambda)^2} e^{-2\lambda R} - \frac{2}{(2\lambda)^2} \right] \\ N &= \left[\frac{R}{4} (1 - e^{-2\lambda R}) - \frac{3}{4\lambda} e^{-2\lambda R} - \frac{3}{(2\lambda)^2} \frac{e^{-2\lambda R}}{R} + \frac{3}{(2\lambda)^2} \cdot \frac{1}{R} \right] \end{aligned} \right\} \quad (51)$$

Es wurde bereits erwähnt, daß die hier verwendeten wasserstoffähnlichen Eigenfunktionen wegen des großen Kernvolumens und des kleinen Bohrschen Radius eine rohe Näherung der wirklichen Verhältnisse darstellen. Die dadurch bedingte Verfälschung des Endresultats sei nun noch abgeschätzt. Unter Vernachlässigung der Protonenabstoßung ($D = 0$) ist nach (16)

$$\varrho_P^{(1)}(r) = \frac{e^2 \varrho_0}{8K} \int \frac{\Phi \Phi^*(r')}{|r - r'|} d\tau' + \text{Const.}$$

Innerhalb des Kerns ersetzen wir die ortsveränderliche Mesonendichte $\Phi \Phi^*(r')$ durch die konstante mittlere Dichte σ

$$\frac{4\pi}{3} R^3 \sigma = \int_{\text{Kern}} |\Phi(r')|^2 d\tau',$$

so daß

$$\varrho_P^{(1)} = \frac{e^2 \varrho_0}{8K} \sigma \int_{\text{Kern}} \frac{d\tau'}{|r - r'|} + \text{Const}$$

folgt. Die Polarisationsdichte erhalten wir nach (19)

$$\eta(r) = \frac{e^2 \varrho_0}{8K} \sigma \left\{ \int_{\text{Kern}} \frac{d\tau'}{|r - r'|} - \frac{8\pi R^2}{3} \right\}.$$

Nun bilden wir

$$\frac{\eta_{\text{Wasserstoff-Funktion}}}{\eta_{\text{exakte Funktion}}} = \frac{\sigma_{\text{Wasserstoff-Funktion}}}{\sigma_{\text{exakte Funktion}}} = \frac{\int_{\text{Kern}} |\Phi(r')|^2 d\tau_{\text{Wasserstoff-Funktion}}}{\int_{\text{Kern}} |\Phi(r')|^2 d\tau_{\text{exakte Funktion}}}.$$

Berechnen wir dieses Verhältnis mit Hilfe der tabulierten exakten Wellenfunktionen (vgl. Fig. 4), so erhalten wir eine Reduktion der Polarisationsdichte um den Faktor 1/2. Wegen der Proportionalität des Polarisationspotentials zur Polarisationsdichte und wegen (31) muß daher die

* Die Mesonendichte des 1s-Zustandes ändert sich bei Pb vom Kerninneren zum Kernäußeren um $\approx 30\%$.

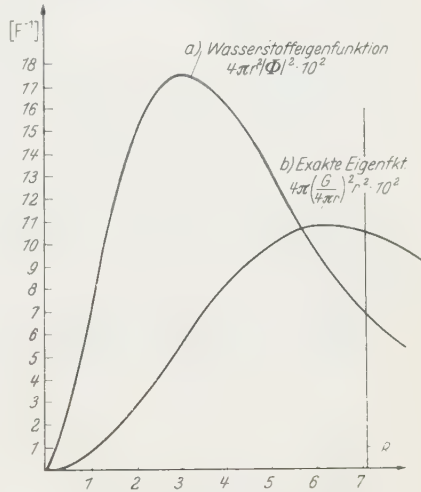


Fig. 4. Vergleich der Aufenthaltswahrscheinlichkeiten des Mesons im Kerninneren. a) Für Wasserstoffeigenfunktionen, b) für exakte Eigenfunktionen. Die Auswertung gilt für Pb

Niveaueverschiebung um mehr als den Faktor $1/2$ kleiner sein als die von uns mit Wasserstoffeigenfunktionen berechnete. Für Pb erhalten wir daher $\Delta E_{1s} \approx 1$ keV.

Die im Modell nicht erfaßte Einteilchenpolarisation läßt sich mit Hilfe der von DEMEUR und JOACHAIN⁴ für das Deuteron durchgeführten Rechnung abschätzen. Die Autoren finden eine Proportionalität der Energieverschiebung von 10^{-2} eV zu der Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Mesons am Ort des Protons. Bildet man mit Hilfe der tabulierten Wellenfunktion⁵ die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Mesons am Ort eines sich außerhalb einer abgeschlossenen Schale befindlichen Protons bei einem schweren Kern, so ergibt sich eine 10^4 mal größere Wahrscheinlichkeit relativ zum Deuteron. Da ein an den Kernrumpf gebundenes Proton im allgemeinen schwerer polarisierbar sein wird als das im Deuteron gebundene Proton, dürfte daher eine Niveaueverschiebung von mehr als 100 eV kaum zu erwarten sein.

Ich danke meinem Lehrer, Herrn Professor Dr. H. MARSCHALL, für die Anregung zu dieser Arbeit und viele wertvolle Diskussionen. Herrn cand. phys. A. FÄSSLER danke ich für seine freundliche Hilfe bei der numerischen Auswertung der Ergebnisse.

⁴ DEMEUR, M., and CH. JOACHAIN: Nuclear Phys. **17**, 329 (1960).

⁵ FORD, D. L., and I. G. WILLS: Calculated Properties of μ -Mesonic Atoms. Los Alamos Scientific Laboratory, Preprint 1959.

Aus dem Fritz-Haber-Institut der Max Planck-Gesellschaft, Berlin-Dahlem

Interferenzbrechung bei Durchstrahlung makroskopischer Kristallkeile

Von

G. LEHMPFUHL* und K. MOLIÈRE

Mit 10 Figuren im Text

(Eingegangen am 2. Mai 1961)

Es wurden die Interferenzbrechungseffekte studiert, die bei Durchstrahlung eines einer Kante benachbarten Kristallbereiches auftreten. Die keilförmigen Kristalle wurden durch Spaltung hergestellt; Versuchssubstanz war MgO. Die nach der dynamischen Theorie zu erwartenden Aufspaltungen der Laue-Strahlen konnten sowohl bei den Beugungsreflexen als auch beim Nullreflex bestätigt werden. Die Beobachtung des Kikuchi-Diagramms ermöglichte es, die Kristallorientierung zu ermitteln und den Kristall so auszurichten, daß der Zweistrahlenfall nahezu realisiert war. Aus den Aufspaltungen der Beugungsreflexe ließen sich die stärkeren Strukturfaktoren mit einer Meßgenauigkeit von etwa 2% bestimmen. Aus der Nullstrahlaufspaltung konnte das Brechungspotential (mittleres inneres Potential) ermittelt werden. Das Verfahren ist einfacher und genauer, als die Methode, welche die Interferenzbrechung an submikroskopischen Kristallen verwendet. Es dürfte allgemein anwendbar sein, falls Kristalle mit ideal ausgebildeten Kantenbereichen zur Verfügung stehen.

A. Einleitung

Wird ein keilförmiger Bereich eines Idealkristalls mit Elektronen durchstrahlt, so löst sich jedes der im Kristall erregten Materiewellenfelder beim Austritt aus dem Kristall in einzelne ebene Vakuumwellen auf, die als getrennte Beugungsstrahlen beobachtbar sind. Da sich die aus verschiedenen Wellenfeldern herrührenden Beugungsstrahlen im allgemeinen in ihrer Richtung unterscheiden, ergibt sich eine Aufspaltung der Beugungsreflexe. Diese Erscheinung, die als Interferenzbrechung bezeichnet wird, ist bisher nur an submikroskopischen Kristallen (meist MgO) nachgewiesen und untersucht worden¹⁻⁷. In diesem Fall beobachtet man an der Stelle eines Laue-Punktes eine komplizierte Feinstrukturfigur, welche dadurch zustande kommt, daß gleichzeitig mehrere

* D 188.

¹ ALTENHEIN, H. J., K. MOLIÈRE u. H. NIEHRS: *Naturwissenschaften* **39**, 447 (1952).

² HONJO, G., and K. MIHAMA: *J. Phys. Soc. Japan* **9**, 184 (1954).

³ MOLIÈRE, K., u. H. NIEHRS: *Z. Physik* **137**, 445 (1954).

⁴ ALTENHEIN, H. J., u. K. MOLIÈRE: *Z. Physik* **139**, 103 (1954).

⁵ MOLIÈRE, K., u. H. NIEHRS: *Z. Physik* **140**, 581 (1955).

⁶ COWLEY, J. M., P. GOODMAN and A. L. G. REES: *Acta crystallogr.* **10**, 19 (1957).

⁷ MOLIÈRE, K., u. H. WAGENFELD: *Z. Kristallogr.* **110**, 3 (1958).

(beim würfelförmigen Kristall maximal sechs) keilförmige Bereiche des Mikrokristalls von den Elektronen durchlaufen werden. Aus den geometrischen Daten der Feinstrukturfiguren (also ohne Intensitätsmessungen) konnten Strukturfaktoren und mittlere Potentiale mit guter Genauigkeit bestimmt werden.

Diese Möglichkeit der Auswertung des Interferenzbrechungseffektes ist allerdings bisher aus mehreren Gründen beschränkt. Einerseits muß man über gut ausgebildete Mikrokristalle von kubischer oder parallelepipedischer Gestalt verfügen, die man nur aus sehr wenigen Substanzen herstellen kann. Andererseits soll der untersuchte Kristall gegen den einfallenden Strahl so orientiert sein, daß der Fall der Einfachanregung vorliegt, d.h., daß für eine und nur eine Netzebenenschar die Laue-Bedingungen exakt oder nahezu exakt erfüllt sind. Nur in diesem Fall läßt sich die Auswertung in einfacher Weise durchführen*. Nun sind bei Elektronenbeugungsexperimenten (Beschleunigungsspannung etwa 50 kV) solche Einstrahlrichtungen, bei denen Einfachanregung vorliegt, nicht leicht zu finden, da die Punkte des reziproken Gitters im Verhältnis zum Radius $1/\lambda$ der Ausbreitungskugel sehr eng liegen, die Kugel also fast immer in die Nähe mehrerer dieser Punkte kommt. Es ist schwierig solche Orientierungen eines Mikrokristalls, bei denen Einfachanregung vorliegt, bewußt herbeizuführen oder zu erkennen. Bei den Experimenten mit polykristallinen Präparaten war man auf den glücklichen Zufall angewiesen, daß das einzelne Kriställchen, dessen Beugungseffekt man beobachtete, gerade die richtige Lage zum einfallenden Strahl hatte. Es ist zwar möglich, den Beugungseffekt eines Mikrokristalls mit den Methoden der Feinbereichsbeugung isoliert zu betrachten⁸, eine definierte Änderung dieser Orientierung erfordert aber einen sehr erheblichen experimentellen Aufwand. Eine Änderung der Beschleunigungsspannung⁷ oder eine Drehung des Kristalls um eine feste Achse⁶, die willkürlich zu den Kristallachsen liegt, bewirkt zwar eine Änderung der Anregungsbedingungen, erlaubt es aber nicht, den Kristall in bestimmter Weise gegenüber dem einfallenden Strahl zu orientieren.

Wegen dieser Schwierigkeiten wurde nun versucht, den Effekt der Interferenzbrechung in seiner einfachsten Form bei Durchstrahlung eines makroskopischen Kristallkeils zu untersuchen. Ein Kristall mit einer exakt ausgebildeten Kante läßt sich leicht auf einem Objekthalter befestigen und in definierter Weise zum Elektronenstrahl ausrichten. Durch Beobachtung des lichtstarken Kikuchi-Diagramms auf dem Leuchtschirm kann man die Orientierung des Kristalls bestimmen und

* In gewissen Fällen von Mehrfachanregung ist die Auswertung zwar auch möglich, aber sehr kompliziert⁷.

⁸ RIECKE, W.D.: Proc. Stockholm Conference on Electron Microscopy 1956, S. 98.

entscheiden, ob der Fall der Einfachanregung vorliegt. Die Aufspaltungen der Reflexe sind nicht so kompliziert wie die bei der Durchstrahlung submikroskopischer Kristalle auftretenden Feinstrukturfiguren, da nur *ein* keilförmiger Bereich durchstrahlt wird. Sie sind nicht nur im Interferenzstrahl, sondern auch im Nullstrahl zu beobachten^{9,10}, da das Beugungsbild nur von einem Kristall herrührt im Gegensatz zu dem Fall eines polykristallinen Präparates, bei dem sich die Nullreflexe der einzelnen Kristalle überlagern. Zur Prüfung dieser Methode wurde die Interferenzbrechung an makroskopischen Kristallkeilen studiert und untersucht, inwieweit sich hierbei Strukturpotentiale und Brechungspotential bestimmen lassen.

B. Theorie

Die bei der Durchstrahlung eines begrenzten Kristalls auftretende Beugung kann man näherungsweise nach der kinematischen Theorie der Elektronenbeugung durch den Schnitt der Intensitätsbereiche der reziproken Gitterpunkte mit der Ausbreitungskugel deuten. Bei einem Kristallkeil besitzen die Intensitätsbereiche der kinematischen Theorie nach VON LAUE¹¹ stachelförmige Auswüchse in Richtung der Keilflächen-Normalen. Die Ausbreitungskugel würde daher bei von der Bragg-Bedingung abweichender Einstrahlrichtung den Intensitätsbereich eines reziproken Gitterpunktes an zwei Stellen schneiden. So wäre eine Aufspaltung der Beugungsstrahlen erklärbar. Diese Vorstellung führt aber zu falschen Aussagen für den Fall, daß die Bragg-Bedingung exakt erfüllt ist. Hierbei geht die Ausbreitungskugel genau durch den reziproken Gitterpunkt und die Aufspaltung müßte verschwinden; doch ist sie in diesem Fall deutlich zu erkennen. Weiter beobachtet man bei solchen Einstrahlrichtungen, bei denen mehrere Interferenzen mit großem Strukturpotential gleichzeitig angeregt sind, eine mehrfache Aufspaltung. Diese Erscheinungen können nur durch die exaktere dynamische Theorie^{11,12} der Elektronenbeugung beschrieben werden, die von N. KATO^{13,14} für den Fall eines endlichen, polyedrischen Kristalls ausgearbeitet worden ist. In den oben genannten Arbeiten^{3-5,7} wurde diese Theorie ausführlich behandelt und diskutiert. Zum besseren Verständnis für das Folgende sollen die Hauptgedanken der Theorie zusammengefaßt werden; im übrigen sei aber auf diese Arbeiten verwiesen.

⁹ LEHMPFUHL, G., u. K. MOLIÈRE: Phys. Verh. **10**, 197 (1959).

¹⁰ LEHMPFUHL, G., u. K. MOLIÈRE: Acta crystallogr. **13**, 1090 (1960).

¹¹ LAUE, M. v.: Materiewellen und ihre Interferenzen. Leipzig: Akademische Verlagsgesellschaft 1948.

¹² BETHE, H.: Ann. Physik **87**, 55 (1928).

¹³ KATO, N.: J. Phys. Soc. Japan **7**, 397 (1952).

¹⁴ KATO, N.: J. Phys. Soc. Japan **7**, 406 (1952).

Wie in den früheren Arbeiten wird eine dimensionslose Schreibweise benutzt: Das elektrostatische Potential des Kristalls wird in Bruchteilen der Beschleunigungsspannung E der einfallenden Elektronen angegeben. Alle Längen werden auf die de Broglie-Wellenlänge $\lambda = h(2meE)^{-1/2}$ bezogen. An Stelle der Fourier-Koeffizienten Φ_g des Potentials verwenden wir also die Größen $\varphi_g = \Phi_g/E$ (g bezeichnet ein Indextripel $g_1 g_2 g_3$); an Stelle des Radiusvektors \mathbf{r} , bzw. des Wellenvektors \mathbf{k} , bzw. des reziproken Gittervektors \mathbf{b} tritt $\mathfrak{R} = \mathbf{r}/\lambda$, bzw. $\mathfrak{S} = \lambda \mathbf{k}$, bzw. $\mathfrak{B}_g = \lambda \mathbf{b}_g = \lambda(g_1 \mathbf{b}_1 + g_2 \mathbf{b}_2 + g_3 \mathbf{b}_3)$. Im Vakuum haben die Wellenvektoren den Betrag 1.

Die innere Normale der von den in Richtung $\mathfrak{S}_0^{(e)}$ einfallenden Elektronen getroffenen Fläche des Kristallkeils (Eintrittsfläche) sei \mathfrak{z}_e , die äußere Normale der Austrittsfläche, durch welche die Elektronen den Kristall verlassen, sei \mathfrak{z}_a .

Für die Vektoren, die vom Ausbreitungspunkt zu den reziproken Gitterpunkten führen, und die für die kinematischen Interferenzbedingungen maßgebend sind, wird die Abkürzung

$$\tilde{\mathfrak{S}}_g = \mathfrak{S}_0^{(e)} + \mathfrak{B}_g \quad (1)$$

eingeführt. Die Komponenten dieser Vektoren senkrecht zu den Kristallgrenzflächen nennen wir

$$\beta_{ge} = (\tilde{\mathfrak{S}}_g, \mathfrak{z}_e), \quad \beta_{ga} = (\tilde{\mathfrak{S}}_g, \mathfrak{z}_a). \quad (2)$$

Die Laue-Bedingungen für das Indextripel $g(g = g_1 g_2 g_3)$ sind erfüllt, wenn

$$|\tilde{\mathfrak{S}}_g| = 1.$$

Ist ϑ der Winkel, welchen $\mathfrak{S}_0^{(e)}$ mit der Netzebenen-schar des Indextripels g bildet, so gilt $(\mathfrak{S}_0^{(e)}, \mathfrak{B}_g) = -|\mathfrak{B}_g| \sin \vartheta$. Bei Erfüllung der Bragg-Bedingung wäre $\vartheta = \vartheta_g$ (Braggscher Winkel), und nach (1) würde gelten $|\mathfrak{B}_g| = 2 \sin \vartheta_g$ (Braggsche Gleichung). Wir definieren die Abweichung von der Erfüllung der Bragg-Bedingung (vgl. Fig. 1) durch den „Anregungsfehler“

$$\varrho_g = 2 \sin \vartheta_g (\sin \vartheta - \sin \vartheta_g) = -(\mathfrak{B}_g, \mathfrak{S}_0^{(e)}) + \frac{1}{2} \mathfrak{B}_g^2 = \frac{1}{2} (1 - \tilde{\mathfrak{S}}_g^2). \quad (3)$$

Ist $\varrho_g \ll 1$, so nimmt diese Größe den Wert $1 - |\tilde{\mathfrak{S}}_g|$ an, bezeichnet also den Abstand des reziproken Gitterpunktes g von der Ausbreitungskugel (diese ist bei unserer Normierung die Einheitskugel). Offenbar ist $\varrho_0 = 0$.

Das Bündel der in der Richtung $\mathfrak{S}_0^{(e)}$ einfallenden Elektronen denken wir uns durch eine Spaltblende begrenzt, deren Ränder parallel zur Kristallkante liegen, und deren Breite groß gegen die de Broglie-Wellenlänge ist. In genügend weitem Abstände von der geometrischen Schattengrenze dieser Spaltblende läßt sich die Wellenfunktion der einfallenden Elektronen näherungsweise durch die ebene Welle

$$\Psi^{(e)} = e^{2\pi i (\mathfrak{S}_0^{(e)}, \mathfrak{R})} \quad (4)$$

darstellen. Der Zustand im Kristall ist eine Überlagerung Blochscher Wellenfelder, die wir durch den Index j numerieren:

$$\Psi = \sum_j c_j \psi_j, \quad (5)$$

$$\psi_j = \sum_g u_{gj} e^{2\pi i (\mathfrak{S}_{gj}, \mathfrak{R})}, \quad (6)$$

$$\mathfrak{S}_{gj} = \mathfrak{S}_0^{(e)} + \mathfrak{B}_g. \quad (7)$$

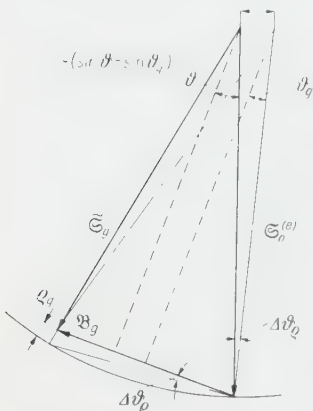


Fig. 1. Definition des Anregungsfehlers

Bei genügend steilem Einfall der Elektronen gegen die beiden Grenzflächen des Kristalls ($\beta_{0e} \approx 1$, $\beta_{0a} \approx 1$) kann man annehmen, daß in den Wellenfeldern diejenigen Teilwellen zu vernachlässigen sind, die gegen die Eintrittsfläche zurücklaufen; man braucht die Reflexion an den Grenzflächen nicht zu berücksichtigen¹⁵. Man erhält hinter der Austrittsfläche eine Summe von ebenen Vakuumwellen

$$u_{gj}^{(a)} = u_{gj} e^{2\pi i (\mathfrak{Z}_{gj}^{(a)}, \mathfrak{R})}. \quad (8)$$

$\mathfrak{Z}_{gj}^{(a)}$ sind die Wellenvektoren (Strahlrichtungen) der austretenden Vakuumwellen.

Ein Zusammenhang zwischen den Vektoren $\mathfrak{Z}_{0j}^{(e)}$, \mathfrak{Z}_{gj} und $\mathfrak{Z}_{gj}^{(a)}$ ergibt sich aus der Forderung, daß die tangentiellen Projektionen der Wellenvektoren an den Grenzflächen stetig sein müssen. Daraus folgt zunächst, daß \mathfrak{Z}_{0j} sich von $\mathfrak{Z}_{0j}^{(e)}$ nur durch einen Vektor unterscheiden kann (vgl. Fig. 2), der senkrecht auf der Eintrittsfläche steht:

$$\mathfrak{Z}_{0j} = \mathfrak{Z}_{0j}^{(e)} + \tau_j \delta e; \quad (9a)$$

wegen (1) und (7) gilt natürlich auch

$$\mathfrak{Z}_{gj} = \mathfrak{Z}_{gj}^{(a)} + \tau_j \delta e. \quad (9b)$$

Die Größen τ_j heißen die „Anpassungen“ der Wellenfelder. Sie sind die Wurzeln der Dispersionsgleichung, der Lösbarkeitsbedingung des linear-homogenen Systems der Grundgleichungen der dynamischen Theorie:

$$\begin{pmatrix} \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots \\ \cdots & D_0 & q & q & \cdots \\ \cdots & q_g & D_g & q_{g-h} & \cdots \\ \cdots & q_h & q_{h-g} & D_h & \cdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_0 \\ u_g \\ u_h \\ \vdots \end{pmatrix} = 0, \quad D_g = 1 + \varphi_0 - \mathfrak{Z}_g^2. \quad (10)$$

Dieses Gleichungssystem entsteht durch Einführung der Fourier-Entwicklung des Kristallpotentials und des Ansatzes (6) in die Schrödinger-Gleichung¹². Die Diagonalglieder der Matrix sind Funktionen von q_g und τ . Mit den Beziehungen (2), (3) und (9) ergibt sich:

$$D_g = 1 + \varphi_0 - \mathfrak{Z}_g^2 = \varphi_0 + 2q_g - \tau(2\beta_{ge} + \tau). \quad (11)$$

Eine Diskussion der Grundgleichungen zeigt, daß in der Matrix des Gleichungssystems (10) alle diejenigen Zeilen und Spalten in erster Näherung weggestrichen werden können, für welche $D_g \gg \varphi_0$, $q_g \gg \varphi_0$ ist. Im Laue-Fall kann dann in den übrig bleibenden Gleichungen τ neben β_{ge} vernachlässigt werden, und es wird $D_g \simeq \varphi_0 + 2q_g - 2\beta_{ge}\tau$. Man spricht vom „N-Strahlenfall“ oder von „(N-1)-facher Anregung“, wenn, außer $q_0 = 0$, N-1 weitere Anregungsfehler $\gg \varphi_0$ sind. Dann ist die Dispersionsgleichung in τ vom N-ten Grade; es gibt N Anpassungen τ_j , also N starke Wellenfelder, die sich aus je N starken Partialwellen zusammensetzen.

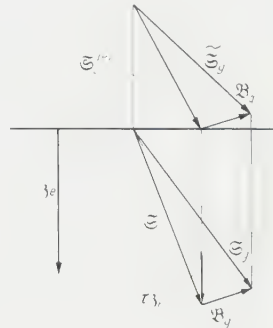


Fig. 2. Anschauliche Darstellung der Stetigkeitsbedingung der Tangentialkomponenten der Wellenvektoren an einer Grenzfläche

¹⁵ NIEHRS, H., u. E.H. WAGNER: Z. Physik **143**, 285 (1955).

Sind die Anpassungen τ_j bekannt, so ergeben sich die Wellenvektoren $\mathfrak{S}_{gj}^{(a)}$ der austretenden Vakuumwellen aus der Forderung der Stetigkeit der Projektionen der Wellenvektoren auf die Austrittsfläche. Man erhält nach Gl. (9), (3) und (11) unter Vernachlässigung der Quadrate von ϱ_g und τ_j

$$\left. \begin{aligned} \mathfrak{S}_{gj}^{(a)} &= \tilde{\mathfrak{S}}_g + \varrho_g \frac{\partial a}{\partial \beta_{ga}} + \tau_j \beta_{ge} \left\{ \frac{\partial e}{\partial \beta_{ge}} - \frac{\partial a}{\partial \beta_{ga}} \right\} \\ \mathfrak{S}_{0j}^{(a)} &= \mathfrak{S}_0^{(e)} + \tau_j \beta_{0e} \left\{ \frac{\partial e}{\partial \beta_{0e}} - \frac{\partial a}{\partial \beta_{0a}} \right\} \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

Bei $(N-1)$ -facher Anregung (beim N -Strahlenfall) gibt es im allgemeinen N verschiedene Wurzeln τ_j der Dispersionsgleichung, also eine N -fache Aufspaltung der Interferenzstrahlen, einschließlich des Nullstrahls. Umgekehrt ergibt die Beobachtung der Aufspaltung im Experiment eine Möglichkeit, die Struktur der Wellenfelder zu untersuchen und mit den Aussagen der Theorie zu vergleichen.

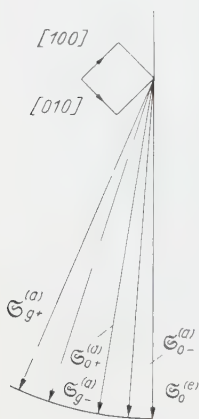


Fig. 3. Aufspaltung des Nullstrahls und des Interferenzstrahls bei Durchstrahlung eines Kristalleils im Zwei-Strahlenfall

Die Theorie ist insofern unvollkommen, als sie die Absorption der Elektronen im Kristall (unelastische Streuung) nicht in Betracht zieht. Diese bewirkt, daß sich die Beugung nur in einem einige 100 Å breiten Bereich in der Nachbarschaft der Kristallkante abspielt. Nach von LAUE^{16,17} sollte nun jedem Wellenfeld je nach der Richtung seines Stromvektors ein verschiedener Absorptionskoeffizient zuzuordnen sein. Die Amplituden der Wellenfelder fallen auf der Austrittsfläche in der Richtung senkrecht zur Kante exponentiell ab. Dementsprechend können die austretenden Beugungsstrahlen nicht durch ebene Wellen beschrieben werden, sondern sie müssen eine Richtungsverteilung besitzen, deren Maxima durch die obigen Formeln (12) wiedergegeben werden. Die Halbwertsbreite der Richtungsverteilung ist, worauf hier nicht näher eingegangen wird, dem Absorptionskoeffizienten des Wellenfeldes proportional. Die verschiedenen Aufspaltungskomponenten eines Beugungsreflexes sollten also verschiedene Halbwertsbreiten besitzen.

Die Dispersionsgleichung ist für den Fall der Einfachanregung in τ quadratisch. Somit ergibt sich nach (12) eine einfache Aufspaltung sowohl im Nullstrahl als auch im Interferenzstrahl (Interferenzdoppelbrechung) (s. Fig. 3). Es besteht im Prinzip auch die Möglichkeit, die Dispersionsgleichung für Mehrstrahlenfälle auszuwerten⁷. Doch erweist es sich in den meisten Fällen als einfacher, das Experiment so zu führen, daß die Einfachanregung nahezu realisiert ist. Im allgemeinen werden jedoch neben der stark angeregten Interferenz noch einige weitere Interferenzen schwach angeregt sein. Ihr Einfluß auf die Reflexaufspaltung kann in einer zweiten Näherung nach einem Verfahren von BETHE¹² durch die sog. dynamischen Zusatzpotentiale erfaßt werden⁷.

Auf der photographischen Platte werden der gegenseitige Abstand der Feinstrukturreflexe im Interferenzstrahl und im Nullstrahl, sowie die Abstände der Nullreflexe vom Auftreffpunkt des Primärstrahls ge-

¹⁶ LAUE, M. V.: Acta crystallogr. **2**, 106 (1949).

¹⁷ LAUE, M. V.: Acta crystallogr. **6**, 217 (1953).

messen (s. Fig. 3). Nach (12) sind das die Größen

$$\left. \begin{aligned} T_g &= |\mathfrak{S}_g^{(a)} - \mathfrak{S}_g^{(e)}| \cdot L = L(\tau^+ - \tau^-) \beta_{ge} \left| \frac{\partial_e}{\beta_{ge}} - \frac{\partial_a}{\beta_{ga}} \right| \\ T_0 &= |\mathfrak{S}_0^{(a)} - \mathfrak{S}_0^{(e)}| \cdot L = L(\tau^+ - \tau^-) \beta_{0e} \left| \frac{\partial_e}{\beta_{0e}} - \frac{\partial_a}{\beta_{0a}} \right| \\ T_0^+ &= |\mathfrak{S}_0^{(a)} - \mathfrak{S}_0^{(e)}| \cdot L = L \tau^+ \cdot \beta_{0e} \left| \frac{\partial_e}{\beta_{0e}} - \frac{\partial_a}{\beta_{0a}} \right| \\ T_0^- &= |\mathfrak{S}_0^{(a)} - \mathfrak{S}_0^{(e)}| \cdot L = L \tau^- \cdot \beta_{0e} \left| \frac{\partial_e}{\beta_{0e}} - \frac{\partial_a}{\beta_{0a}} \right|. \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

Hierbei sind τ^+ und τ^- die beiden Wurzeln der reduzierten Dispersionsgleichung, und L ist die Länge der Beugungskammer. Für den Kristallkeil mit einem Keilwinkel von 90° wird

$$\left. \begin{aligned} T_g &= L \sqrt{\frac{1}{\beta_{ge}^2} + \frac{1}{\beta_{ga}^2}} \cdot \sqrt{(\varrho'_g)^2 + (\varphi'_g)^2}, \\ T_0 &= L \sqrt{\frac{1}{\beta_{0e}^2} + \frac{1}{\beta_{0a}^2}} \cdot \sqrt{(\varrho'_g)^2 + (\varphi'_g)^2}, \\ T_0^+ + T_0^- &= L \sqrt{\frac{1}{\beta_{0e}^2} + \frac{1}{\beta_{0a}^2}} \cdot (\varrho_g + \varphi'_g). \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

Dabei bedeutet

$$\left. \begin{aligned} \varrho'_g &= \varrho_g + \left[\frac{1}{2} (\Sigma_{gg} - \Sigma_{00}) - \varphi_0 \frac{(\mathfrak{B}_{g, \partial_e})}{2\beta_{0e}} \right] \\ \varphi'_g &= \varphi_0 + \left[\frac{1}{2} (\Sigma_{gg} + \Sigma_{00}) \right] \\ \varphi'_g &= \varphi_g + [\Sigma_{g0}]. \end{aligned} \right\} \quad (15)$$

Die Σ_{mn} sind die dynamischen Zusatzpotentiale der Betheschen 2. Näherung:

$$\Sigma_{mn} = \sum_{h(\neq 0, g)}'' \frac{\varphi_{m-h} \cdot \varphi_{h-n}}{\mathfrak{S}_h^2 - 1 - \varphi_0} \simeq - \sum_{h(\neq 0, g)}'' \frac{\varphi_{m-h} \cdot \varphi_{h-n}}{2\varrho_h}. \quad (16)$$

Für eine erste Auswertung kann man die in Klammern stehenden Glieder der Gl. (15) vernachlässigen und braucht sie erst bei genaueren Rechnungen zu berücksichtigen.

Aus den gemessenen Größen T_g bzw. T_0 können die Strukturpotentiale $\Phi_g = \varphi_g \cdot E$ und aus $T_0^+ + T_0^-$ das Elektronenbrechungspotential $\Phi_0 = \varphi_0 \cdot E$ bestimmt werden, wenn die Richtungskosinus β_{0i} des einfallenden Elektronenstrahls in bezug auf die Kristallachsen, der Anregungsfehler ϱ_g und die Beschleunigungsspannung E bekannt sind. Diese Größen können mit guter Genauigkeit aus dem Kikuchi-Diagramm ermittelt werden (s. Anhang).

C. Experimentelle Anordnung

1. Strahlquelle. Für die Feinstrukturuntersuchungen wurde eine besondere Beugungsapparatur aufgebaut. Als Strahlquelle diente der Strahlkopf mit Feinstrahlkondensor des Siemens Elmiskop I. Mit diesem System läßt sich einerseits ein helles Beugungsdiagramm bei geringerer Auflösung erzeugen und andererseits durch geeignete Fokussierung, die zur Auflösung der Feinstrukturen erforderliche Bestrahlungsapertur von 10^{-5} rad erreichen. Der kleinste Fokussdurchmesser bei Fokussierung auf das Objekt ist dort etwa 2μ , wobei sich die Bestrahlungsapertur aus der Größe der Kondensoraperturblende ergibt. Wird auf den Leuchtschirm fokussiert, so ist dort der Strahldurchmesser etwa 12μ .

2. Objekthalter. Da speziell für die Kantendurchstrahlung die Bewegung und Einstellung des Präparates im Elektronenstrahl reproduzierbar und mit großer Genauigkeit erfolgen muß, wurde für diese Untersuchungen ein besonderer Objekthalter konstruiert*. Bei einer Änderung der Einstrahlrichtung durch Drehung des Präparates sollte der untersuchte Kristallbereich im Elektronenstrahl bleiben, der bei Fokussierung auf das Objekt, wie gesagt, einen Durchmesser von etwa 2μ hatte. Zur Erfüllung dieser Forderung war ein erheblicher Aufwand notwendig, wenn ein so kleiner Bereich untersucht werden sollte. Von bereits bekannten Präparathaltern¹⁸⁻²¹ schien nur ein Verstell Tisch von E. RUSKA und F. STÖCKLEIN²¹ für eine Verbesserung geeignet zu sein. Das gleiche Prinzip wurde angewendet und dabei etwa die gleiche Einstellgenauigkeit erzielt, die auch RIECKE und STÖCKLEIN²² erreichten. Zur Beseitigung von Aufladungen nichtleitender Präparate wurde in die Objektkammer ein Entlader²¹ eingebaut.

3. Registriereinrichtung. Beobachtungstubus mit Leuchtschirm und Reihenaufnahmekassette für 12 Platten 6×9 wurden vom Siemens Elmiskop übernommen. Die Beugungslänge der Apparatur beträgt $405 \pm 0,25$ mm. Zwischen Präparat und Photoplatte befinden sich keine Linsen.

Eine Kontrolle der Fokussierung auf dem Leuchtschirm ist sehr schwierig, da das Auflösungsvermögen eines üblichen Schirmes nur

* Für viele Ratschläge und wertvolle Hinweise möchten wir Herrn F. STÖCKLEIN unseren Dank aussprechen.

¹⁸ THIESSEN, P. A., u. TH. SCHOON: Z. phys. Chem., Abt. B **36**, 195 (1937).

¹⁹ HEISE, F.: Optik **9**, 139 (1952).

²⁰ LADAGE, A.: Z. Physik **144**, 354 (1956).

²¹ RIECKE, W. D.: Z. wiss. Mikr. u. mikr. Techn. **36**, 427 (1958).

²² RIECKE, W. D., u. F. STÖCKLEIN: Z. Physik **156**, 163 (1959).

etwa $100\text{ }\mu$ beträgt²³. Daher wurde zur genauen Fokussierung in Höhe der Photoplatte ein Zinksulfid-Einkristall angebracht*, der vor der Aufnahme aus dem Strahlengang geschoben wird. Dieser Einkristall wird mit einer 10,5fach vergrößernden Lupe betrachtet.

4. Ablenkkondensator. Zwischen Präparat und Photoplatte befindet sich ein Ablenkkondensator, der es ermöglicht, durch Anlegung eines Wechselfeldes den Nullstrahl oder einen Interferenzstrahl zu einem Strich von etwa 1 mm Länge auszuziehen. Eine Reflexaufspaltung läßt sich dann photometrisch sehr genau ausmessen, da über die statistischen Schwankungen des Plattenkorns gemittelt wird. Das Ablenkkfeld steht senkrecht auf der Ebene, in der die aufgespaltenen Interferenzstrahlen des betreffenden Indextripels liegen. Zur Auslenkung dient eine Sägezahnspannung von 50 Hz. Diese Frequenz wurde gewählt, damit eventuell vorhandene Wechselstromstörfelder leichter erkannt werden können.

5. Spannungsversorgung. Als Hochspannungsquelle wird eine kommerzielle Anlage von Zeiss (HA 60) benutzt, mit der kontinuierlich Spannungen zwischen 20 und 65 kV eingestellt werden können. Durch geeignete Stabilisierung wurde für die Hochspannung eine Konstanz von etwa $7 \cdot 10^{-5}$ pro Minute erreicht.

D. Durchführung der Experimente

Alle Untersuchungen dieser Arbeit wurden mit Magnesiumoxydkristallen durchgeführt**. MgO hat Steinsalz-Struktur; die Gitterkonstante beträgt $4,202\text{ }\text{\AA}$. Uns stand ein Periklas von sehr guter Qualität zur Verfügung***, von dem kleine Würfelchen von 1–2 mm Kantenlänge so abgespalten wurden, daß eine von zwei frischen (100)-Spaltflächen gebildete Kante entstand. Die Kristalle wurden auf dem Tischchen des Objekthaltes mit Aquadag (einer wäßrigen Suspension von Graphit) angeklebt, so daß der zu untersuchende Kantenbereich (der Kristallkeil) durchstrahlt werden konnte.

* Dieser Kristall wurde uns freundlicherweise von Frau Dr. R. BROSER-WARMINSKI überlassen.

** MgO ist wegen der guten Spaltbarkeit, des hohen Schmelzpunktes und der Unempfindlichkeit der Oberflächenstruktur gegen Luftfeuchtigkeit als Versuchssubstanz für den vorliegenden Zweck besonders geeignet. Bei anderen Substanzen (z. B. NaCl, LiF) sind kompliziertere Vorsichtsmaßnahmen nötig (Präparation in trockener Atmosphäre, Vermeidung einer zu hohen Stromdichte bei den Beugungsexperimenten). Deshalb haben wir uns zunächst auf MgO beschränkt.

*** Dieser Kristall wurde uns freundlicherweise von Herrn Professor BORRMANN überlassen.

²³ ARDENNE, M. v.: Tabellen der Elektronenphysik, Ionenphysik und Übermikroskopie, S. 175.

Bei der Präparation mußte darauf geachtet werden, daß eine möglichst ungestörte Kante entstand. Das wurde zunächst lichtmikroskopisch und dann elektronenoptisch kontrolliert, indem eine Schattenabbildung der Kante hergestellt wurde. Sehr feine Unregelmäßigkeiten der Kante waren leicht festzustellen, wenn man im Kikuchi-Diagramm einen einzelnen Reflex bei einer Verschiebung des Kristalls in Richtung der Kante auf dem Leuchtschirm mit einer Lupe beobachtete. Bei einem ungestörten Kristallkeil darf hierbei keine Änderung der Intensität des

Reflexes feststellbar sein. Diese Prüfungsmethode ist empfindlicher als die lichtmikroskopische Kontrolle.

Bei Verwendung einer $100\text{ }\mu$ Kondensoraperturblende und bei Fokussierung auf den Leuchtschirm war der Strahldurchmesser in Objektnähe $70\text{ }\mu$. Die ungestörten Keilbereiche mußten daher eine Ausdehnung von etwa $20\text{ }\mu$ besitzen, da der Elektronenstrahl diese Länge des Keils erfaßte, wenn der Kristall nur $1\text{ }\mu$ in den Strahl hineintauchte. Ideale Bereiche dieser Ausdehnung waren im allgemeinen leicht zu finden. Mitunter waren sie noch wesentlich größer.

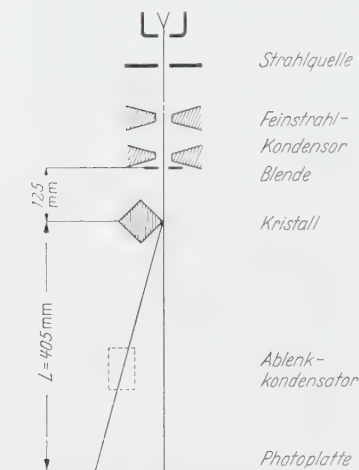


Fig. 4. Schematischer Strahlengang bei Durchstrahlung eines Kristallkeils. Gestrichelt ist eine Platte des Ablenk-kondensators angedeutet

Den schematischen Strahlengang zeigt Fig. 4. Zur Aufnahme des Kikuchi-Diagramms wurde der Elektronenstrahl auf die Kante des Kristallkeils fokussiert. Auf dem Leuchtschirm waren dann die stark angeregten Reflexe zu erkennen. Der Kristall ließ sich leicht so einstellen, daß nur eine gewünschte Interferenz stark angeregt und damit der Fall der Einfachanregung annähernd realisiert war. Um ein kontrastreiches Kikuchi-Diagramm zu erhalten, wurde die Photoplatte etwa $\frac{1}{2}$ bis 1 min belichtet. Wegen dieser langen Belichtungszeit traten in den Aufnahmen auch schwache Nebenanregungen hervor, deren Intensität aber wesentlich geringer war als die der stark angeregten Interferenz.

Zur Fokussierung auf den Leuchtschirm wurde der Kristall aus dem Strahl herausgezogen und der Fokus durch Beobachtung des ZnS-Einkristall-Leuchtschirms kontrolliert. Nachdem der Kristall wieder an den Strahl herangeschoben war, konnte man bei stark angeregter Interferenz den Reflex schwach auf dem Leuchtschirm erkennen. Zu seiner Aufnahme genügten Belichtungszeiten von 1 bis 3 sec. Anschließend

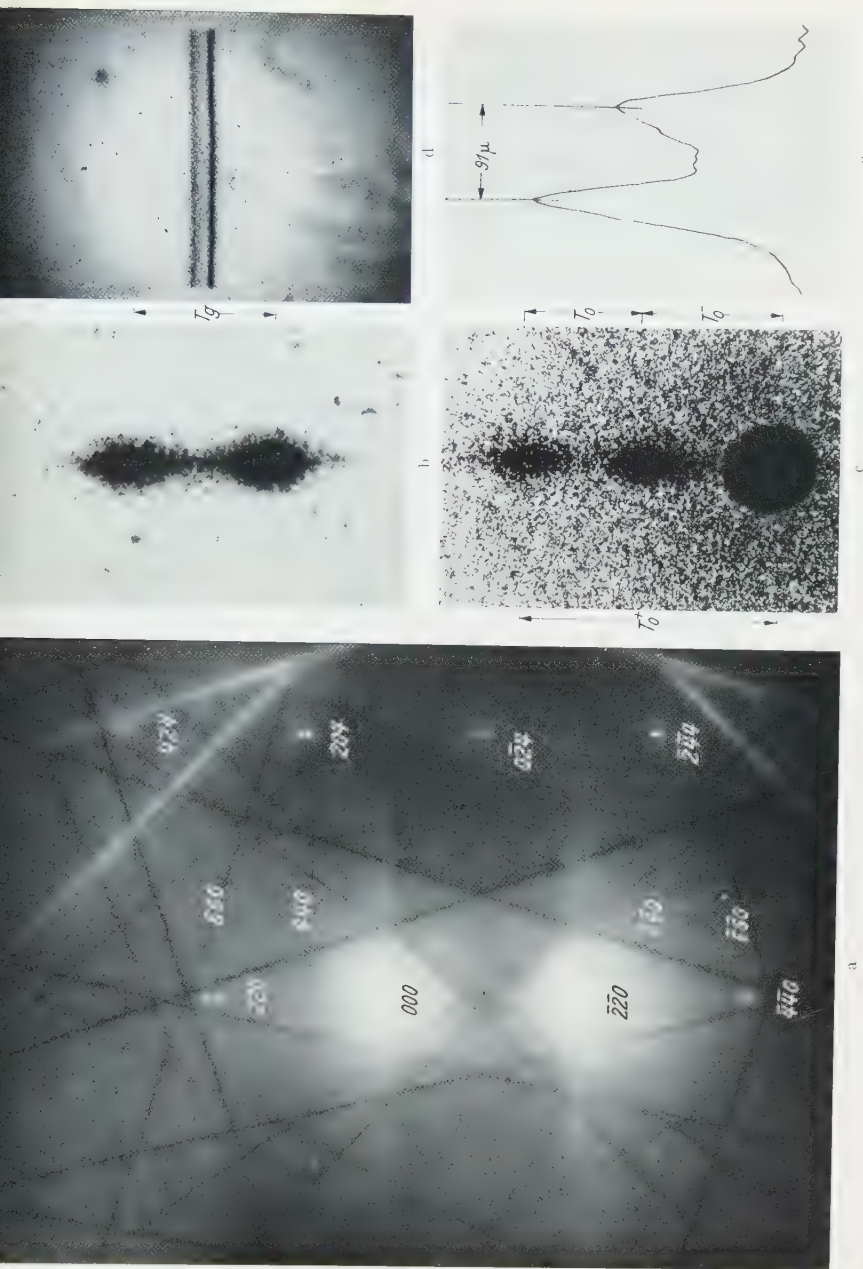


Fig. 5a. a. Aufnahmen zur Bestimmung des Strukturpotentials und des Brechungspotentials für den Reflex ($2\bar{2}0$); b. Reflex ($2\bar{2}0$); c. Umgebung des Nullstrahls; d. mit dem Ablenk Kondensator zu einem Strichpaar ausgezogener Reflex ($2\bar{2}0$); (in geringerer optischer Vergrößerung als bei b und c); e. Photometerkurve der Intensitätsverteilung im Reflex ($2\bar{2}0$). (Der Abstand I_g betrachtet auf der Photoplatte 91μ)

an diese Aufnahme wurde der Interferenzstrahl mit Hilfe des Ablenk-kondensators zu einem Strichpaar von etwa 1 mm Länge ausgezogen.

Für diese Aufnahmen und Untersuchungen mußte der Entlader eingeschaltet werden, da die Aufladungen des Kristalls stark störten. Als Photomaterial dienten Perutz Silber Eosin Platten $6,5 \times 9$ cm.

In Fig. 5 sind die Aufnahmen zusammengestellt, die zur Bestimmung des Strukturpotentials und des Brechungspotentials für den Reflex $(\bar{2}20)$ nötig waren. a) zeigt das Kikuchi-Diagramm, in dem man die schwachen Nebenanregungen erkennt, b) den Reflex $(\bar{2}20)$ bei Fokussierung auf die Photoplatte, c) die Umgebung des Nullstrahls (der stark geschwärzte, runde Fleck rührt von dem am Kristall vorbeigehenden Primärstrahl her; darüber sieht man die beiden Null-Reflexe). Schließlich ist in e) die Photometerkurve des zu einem Strichpaar (d) ausgezogenen Reflexes $(\bar{2}20)$ wiedergegeben. Aus dem Feinstrukturabstand T_g im Reflex $(\bar{2}20)$ oder aus dem Abstand der Null-Reflexe T_0 wurde das Strukturpotential Φ_g nach der Beziehung (14) bestimmt. Das Brechungspotential Φ_0 wurde aus den Abständen $T_0^+ + T_0^-$ der Null-Reflexe vom Primärfleck nach (14) berechnet.

E. Auswertung

Das Kikuchi-Linien-System ist fest mit dem Kristall verbunden. Es bietet daher ein ausgezeichnetes Hilfsmittel zur Orientierungsbestimmung des Kristalls in bezug auf die Richtung des einfallenden Elektronenstrahls, der sich im Diagramm markiert*. Die Linienabstände und die Lage des Null-Reflexes im Kikuchi-Diagramm wurden mit einem Koinzidenzmaßstab ausgemessen. Es erwies sich als zweckmäßig, die Wellenlänge nur aus dem Abstand eines gut erkennbaren und scharfen Kikuchi-Linienpaares zu ermitteln. Die Wellenlänge konnte nach dieser Methode besser als auf 10^{-3} bestimmt werden. Als Bezugslinien zur Bestimmung der Richtungskosinus dienten die Spur der (110)-Ebene und eine auf dieser senkrechte Gerade, die durch die nächste Zone geht. Es wurden die Abstände des Null-Reflexes von entsprechenden Kikuchi-Linien gemessen und dann mit Hilfe der Wellenlänge die Abstände auf diese Bezugslinie umgerechnet. Bei der Auswertung war zu beachten, daß das Kikuchi-Diagramm infolge der Brechung etwas verschoben wird. Daher mußte die Lage des Schwerpunktes der beiden Null-Reflexe ausgemessen werden und nicht die des Primärstrahls.

Zur Bestimmung des Anregungsfehlers konnte entweder der Abstand des Reflexes g von der zugehörigen Linien g ausgemessen werden oder, wenn die Linie zu breit war, auch der Abstand von einer höher indizierten schärferen Linie $n \cdot g$. Der Abstand der Feinstrukturreflexe wurde aus einer anderen Aufnahme, bei der auf die Photoplatte fokussiert war, mit einem Meßmikroskop bestimmt. Wurde der Reflex mit dem Ablenk-

* Das Verfahren zur Bestimmung der Orientierung ist im Anhang näher erläutert.

kondensator zu einem Strichpaar ausgezogen, so konnte der Reflexabstand sehr genau mit einem Mikrophotometer ausgemessen werden (s. Fig. 5). Bei der Auswertung wurde die geringe Änderung der Einstrahlrichtung beim Übergang vom Kikuchi-Diagramm zum Punktdiagramm berücksichtigt. Wird auf die Photoplatte fokussiert, so schließt bei Verwendung einer 100 μ Kondensoraperturblinde ein Randstrahl mit der Strahlachse den Winkel $\alpha = 1 \cdot 10^{-4}$ ein. Da der Kristall nur ganz wenig in den Strahl eintaucht, bestimmen diese Randstrahlen die Einfallrichtung. Aus der Kikuchi-Aufnahme wurde stets die Lage des Reflexschwerpunktes, also die Lage der Strahlachse bestimmt. Der Anregungsfehler mußte daher um diesen Winkel α , der von der Größe der Kondensoraperturblinde abhängt, korrigiert werden.

Waren im Kikuchi-Diagramm Nebenanregungen zu sehen, so mußte ihr Einfluß durch die Betheschen Zusatzpotentiale (16) berücksichtigt werden.

F. Diskussion der Meßergebnisse

Die nach dieser Methode bestimmten Strukturpotentiale und das Brechungspotential sind in der Tabelle zusammengestellt. In der zweiten Spalte sind die Strukturpotentiale wiedergegeben, die ohne Berücksichtigung der Zusatzpotentiale bestimmt wurden. Sie zeigen bereits

Tabelle. Strukturpotentiale Φ_{hkl} und Brechungspotential Φ_{000} für MgO

hkl	Φ_{hkl} unkorr. V	Φ_{hkl} korr. V	Φ_{hkl} theoret. V	Φ_{non} unkorr. V	Φ_{non} korr. V	Φ_{hkl}			
						MOLIÈRE ⁵ NIEHRS	HONJO ² MIHAMA	COWLEY ⁶ GOODMAN REES	MOLIÈRE ⁷ WAGENFELD
111	2,3	1,8	1,20	(11,2)	(11,0)	1,25	1,7	1,2	1,92
200	7,8	7,7	7,77	14,3	13,9	7,55	7,0	8,0	7,57
220	5,3	5,1	5,14	14,9	14,9	5,09	5,5	5,3	5,0
222	3,6	3,7	3,92	13,5	13,5	3,5	4,2	3,5	3,87
400	1,6	3,2	3,15	14,2	15,4	2,6		2,7	
420	2,1	2,8	2,61	13,9	14,3	2,4		2,2	
440	1,8	1,9	1,70	15,5	15,8	2,1		1,2	

Bei den korrigierten Werten (Spalte 3 und 6) wurde der Einfluß schwacher Nebenanregungen durch die Betheschen Zusatzpotentiale berücksichtigt. Die theoretischen Werte (Spalte 4) wurden aus Hartreeschen Atomeigenfunktionen für 293° K berechnet⁵.

eine recht gute Übereinstimmung mit den theoretischen Werten (Spalte 4) mit Ausnahme der Strukturpotentiale Φ_{111} und Φ_{400} . Hier ist eine erhebliche Abweichung von den theoretischen Werten* festzustellen.

* Sie wurden unter Verwendung der Hartreeschen Atomeigenfunktionen für 293° K berechnet⁵ (s. Spalte 4) und stimmen im allgemeinen gut mit den Werten überein, die aus Röntgendaten von BRILL, HERRMANN und PETERS²⁴ erhalten wurden.

²⁴ BRILL, R., C. HERRMANN u. CL. PETERS: Z. anorg. allg. Chem. **257**, 151 (1948).

Beim Reflex $(00\bar{4})$ wird diese Abweichung durch die gleichzeitige Anregung der Reflexe (002) , $(00\bar{2})$ und $(00\bar{6})$ (s. Fig. 6) verursacht. Ihre Anregungsfehler hängen nur vom Radius der Ausbreitungskugel ab und sind im übrigen unabhängig von der Einstrahlrichtung, wenn für $(00\bar{4})$

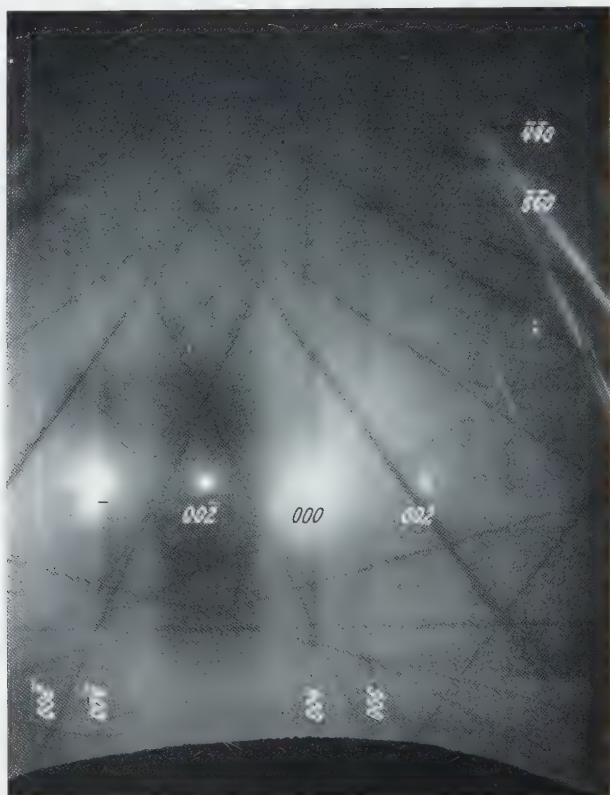


Fig. 6. Kikuchi-Diagramm bei Anregung des Reflexes $(00\bar{4})$

die Bragg-Bedingung exakt erfüllt ist. Das Strukturpotential des Reflexes (200) ist sehr stark, hinzu kommt die starke Kopplung $(00\bar{2}) - (00\bar{4}) = (002)$ und der relativ kleine Anregungsfehler $\varrho_{00\bar{2}} = 3,2 \cdot 10^{-4}$. Daher müssen zur Bestimmung des Strukturpotentials Φ_{400} unbedingt die Zusatzpotentiale für die Nebenanregungen $(00\bar{6})$, $(00\bar{2})$ und (002) berücksichtigt werden. Man erhält dann eine gute Übereinstimmung (Spalte 3) mit dem theoretischen Wert. Auch beim Reflex $(11\bar{1})$ ist die Abweichung zu verstehen, da bei der Aufnahme verschiedene Reflexe mit großem Strukturpotential schwach angeregt waren. Das Strukturpotential Φ_{111} ist klein, und daher machen sich die Einflüsse der anderen Reflexe stark bemerkbar. Ihre Berücksichtigung bringt eine wesent-

zeigte z.B. ein Versuch zur Auswertung des Reflexes ($0\bar{2}4$), bei dem sich ohne Anwendung der Betheschen Korrektur zufällig fast genau der theoretische Wert des Strukturpotentials (2,6 V) ergeben hatte. Bei der Aufnahme war außer dem Reflex ($0\bar{2}4$) auch der Reflex ($\bar{2}44$) mit kleinem Anregungsfehler angeregt ($q_{\bar{2}44} \approx 10^{-4}$, während $q_{0\bar{2}4} \approx 5 \cdot 10^{-5}$). Berücksichtigt man in diesem Fall die Nebenanregungen durch die Zusatzpotentiale, so ergibt sich für $\Phi_{0\bar{2}4}$ ein „korrigierter Wert“ von 1,4 V, der viel zu tief liegt. Für diesen Fall müßte das dynamische Grundgleichungssystem (5) auf drei Gleichungen entsprechend einer Zweifachanregung reduziert werden. Die Dispersionsgleichung (10) wird dann eine Gleichung dritten Grades in τ ?. Es ist aber nicht nötig, in dieser Weise vorzugehen, da die experimentellen Bedingungen leicht so abgeändert werden können, daß der Fall der Einfachanregung nahezu realisiert wird (s. Tabelle, Zeile 6). Innerhalb der Meßgenauigkeit besteht dann eine recht gute Übereinstimmung mit dem theoretischen Wert, wenn die Nebenanregungen durch Zusatzpotentiale berücksichtigt werden.

Die Genauigkeit, mit der die Φ_{hkl} angegeben werden können, nimmt ab, je kleiner die Strukturpotentiale werden. Falls $q_{hkl} = 0$ ist, kann das Strukturpotential mit dem geringsten relativen Fehler bestimmt werden. Bei kleinen Φ_{hkl} sind die Richtungsunterschiede der Ausbreitungsvektoren einer Interferenz jedoch im Fall $q_{hkl} = 0$ so gering, daß sie wegen der Strahlverbreiterung infolge Absorption nicht mehr aufgelöst werden können. Die durch Absorption bedingte Halbwertsbreite der Reflexe beträgt bei einer Beugungslänge von 405 mm etwa 30μ , während der Abstand der Feinstrukturreflexe z.B. für die Interferenz (440) bei 50 kV Strahlspannung und exakter Erfüllung der Bragg-Bedingung ($q_{440} = 0$) bei etwa 29μ liegt. Will man in diesen Fällen überhaupt eine Aufspaltung beobachten, so muß der Anregungsfehler von Null verschieden gewählt werden, wodurch aber die Genauigkeit geringer wird. Die größte Genauigkeit wurde bei den Reflexen (002) und (220) erzielt. Der Meßfehler beträgt etwa 2%.

Ein Vergleich der Strukturpotentiale mit den Werten anderer Autoren^{2,5-7} aus Untersuchungen an submikroskopischen Kristallen zeigt die Brauchbarkeit dieser Methode. Sie liefert zum Teil mit der Theorie besser übereinstimmende Ergebnisse, da aus den Kikuchi-Diagrammen die Nebenanregungen erkannt und dann berücksichtigt werden können.

Zur Bestimmung der Strukturpotentiale wurde im allgemeinen die Nullstrahlaufspaltung nicht herangezogen, da die unterschiedliche Intensität der beiden Partialwellen bei von Null verschiedenem Anregungsfehler und die erhöhte Untergrundschwärzung eine Auswertung sehr erschweren. Jedoch wurde aus den Nullstrahlaufspaltungen das Brechungspotential Φ_{000} (Tabelle, Spalte 5 und 6) ermittelt. Der zuverlässigste Wert wurde aus dem Nullstrahl des Reflexes (220) mit einer Genauigkeit von etwa 3% erhalten. Auch die Werte zu den Reflexen (420) und (440) sind mit guter Genauigkeit bestimmt worden, während die anderen Werte in einem größeren Ungenauigkeitsintervall bis zu 10% liegen. Als Mittelwert erhält man für Φ_{000} (ohne Berücksichtigung des

wegen starker Nebenanregungen sehr unsicheren Wertes 11,0 V bei (111))

$$\Phi_{000} = 14,4 \text{ V}.$$

Der theoretische Wert liegt nach FENGLER⁵ etwa bei 12 V mit einem Fehler von etwa 10%. Die Abweichungen hiervon und die Schwankungen der Φ_{000} -Werte können auf unterschiedliche Beschaffenheit der Keiloberflächen zurückzuführen sein. Von gewissem Einfluß auf die Meßgröße Φ_{000} war die Stromstärke des Entladers. Es wurde mehrmals qualitativ die Abhängigkeit des Brechungspotentials von der Entladerstromstärke beim Reflex ($\bar{2}20$) untersucht. Mitunter war Φ_{000} in einem großen Variationsbereich des Entladerstroms von 0,05 bis 1,0 mA nahezu konstant, wuchs aber bei ausgeschaltetem Entlader auf 16,5 V, während bei einer anderen Versuchsreihe kein einfacher Zusammenhang zwischen der Entladerstromstärke und der Meßgröße für Φ_{000} zu erkennen war. In Übereinstimmung mit den Angaben von KEHOE⁵ war aber stets eine deutliche Vergrößerung von Φ_{000} zu beobachten, wenn der Entlader ausgeschaltet wurde. Hierdurch läßt sich die Abweichung des aus der Durchstrahlung submikroskopischer Kristalle ermittelten Brechungspotentials von 15,3 V, das ohne Verwendung eines Entladers bestimmt wurde, von dem oben angegebenen Wert erklären.

G. Beobachtung von Mehrfachanregungen

Bei gleichzeitiger Anregung von N Interferenzen entstehen im Kristall $N+1$ Wellenfelder, die sich beim Verlassen des Kristalls durch eine zur Eintrittsfläche nicht parallele Austrittsfläche für jede Interferenz in $N+1$ ebene Wellen auflösen. Bei Mehrfachanregungen ($N > 1$) beobachtet man trotzdem meistens nur eine einfache Aufspaltung der

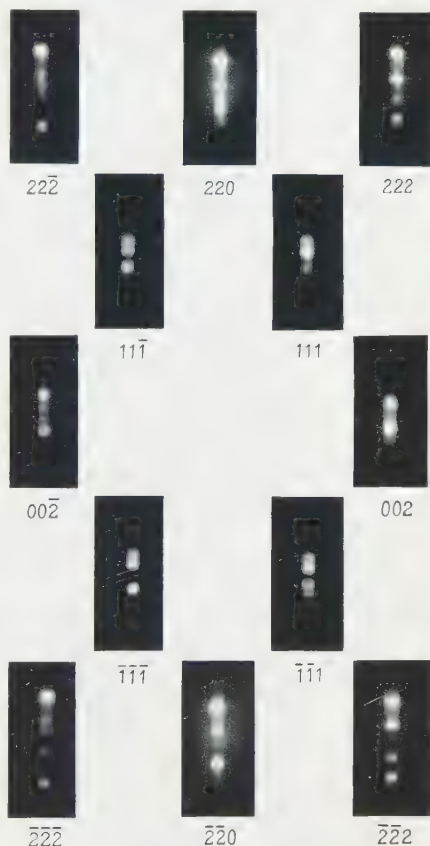


Fig. 8. Mehrfache Aufspaltung der Beugungsreflexe bei Einstrahlung in Richtung $\sim [110]$

Beugungsreflexe, da in den einzelnen Wellenfeldern im allgemeinen nur zwei Partialwellen starke Amplituden haben⁷. Nur bei ganz speziellen Einstrahlrichtungen wurden von MOLIÈRE und WAGENFELD⁷ höhere Aufspaltungen beobachtet. Wir fanden sie immer dann, wenn annähernd in Richtung einer Zone hoher Symmetrie ($[\bar{1}10]$ oder $[\bar{1}11]$) eingestrahlt wurde und dabei der Anregungsfehler aller Reflexe relativ groß war. In Fig. 8 sind mehrere Reflexe wiedergegeben, die bei Einstrahlung in Richtung $\sim [\bar{1}10]$ mit von Null verschiedenen Anregungsfehlern auftraten. Man erkennt deutlich beim Reflex $(\bar{2}2\bar{2})$ sechs Wellenfelder und bei einigen anderen Reflexen sogar sieben und mehr. Zu dieser Aufnahme wurde auf den Kristall fokussiert und der Strahl durch eine $40\text{ }\mu$ -Kondensoraperturblende begrenzt. Hierbei sind die mehrfachen Reflexaufspaltungen besser zu erkennen als bei einer Fokussierung auf die Photoplatte. Wird der Reflex durch das Ablenkkfeld zu Strichen ausgezogen, so lassen sich die Feinstrukturreflexe photometrisch mit guter Genauigkeit ausmessen. Eine Auswertung solcher Vielstrahlfälle ist äußerst kompliziert und erfordert eine praktisch kaum zu realisierende Meßgenauigkeit für die Bestimmung der Anregungsbedingungen. Selbst bei einem 3-Strahlenfall hängen die Aufspaltungen sehr empfindlich von den Anregungsbedingungen ab, die aus dem Kikuchi-Diagramm nur mit beschränkter Genauigkeit ermittelt werden können.

Anhang

Ermittlung der Anregungsbedingungen. Da das Kikuchi-Liniensystem mit dem Kristall fest verbunden ist, können die Richtungskosinus des Vektors $\mathfrak{S}_0^{(e)}$ aus der Lage der Nullreflexe in diesem Diagramm berechnet werden. Dazu ist jedoch eine genaue Indizierung des Diagramms notwendig und zwar des Ausschnittes, der durch die Versuchsbedingungen gegeben ist. Bei den Experimenten wurde annähernd parallel zur (110)-Ebene eingestrahlt. Der Kristall wurde um die $[110]$ -Achse um größere Winkel (bis $\pm 50^\circ$), dagegen um die $[001]$ -Achse nur wenig (etwa $\pm 3^\circ$) gedreht (vgl. zur Kristallorientierung Fig. 3). Von Interesse ist daher der Teil des Kikuchi-Diagramms, welcher dem (220) -Band benachbart ist. Man kann ihn sich auf einer Zylinderfläche um den Kristall vorstellen mit $[110]$ als Achse und einem Radius L , der gleich der Beugungslänge ist. Das Diagramm kann leicht konstruiert werden, wenn man die Schnittlinien der Netzebenen mit dem Zylindermantel zeichnet. Die entsprechenden Kikuchi-Linien-Paare verlaufen dann zu den Netzebenenspurten parallel. Zur Konstruktion werden nur die Zonenachsen berücksichtigt, die in der (110)-Ebene liegen. Für die Netzebenen $(h_1 h_2 h_3)$, die zu der Zone $(n_1 n_2 n_3)$ gehören, gilt

$$n_1 h_1 + n_2 h_2 + n_3 h_3 = 0.$$

Sie bilden mit der (110)-Ebene den Winkel ε , der sich aus

$$\cos \varepsilon = \frac{h_1 + h_2}{\sqrt{2(h_1^2 + h_2^2 + h_3^2)}}$$

ergibt.

Die in der (110)-Ebene liegenden Zonenachsen haben die spezielle Form $[n_1 \bar{n}_1 n_3]$. Die Zonenachsen schließen mit der $[001]$ -Achse den Winkel $90^\circ - \varphi = \alpha$ ein

$$\sin \varphi = \cos \alpha = \frac{n_3}{\sqrt{2n_1^2 + n_3^2}}.$$

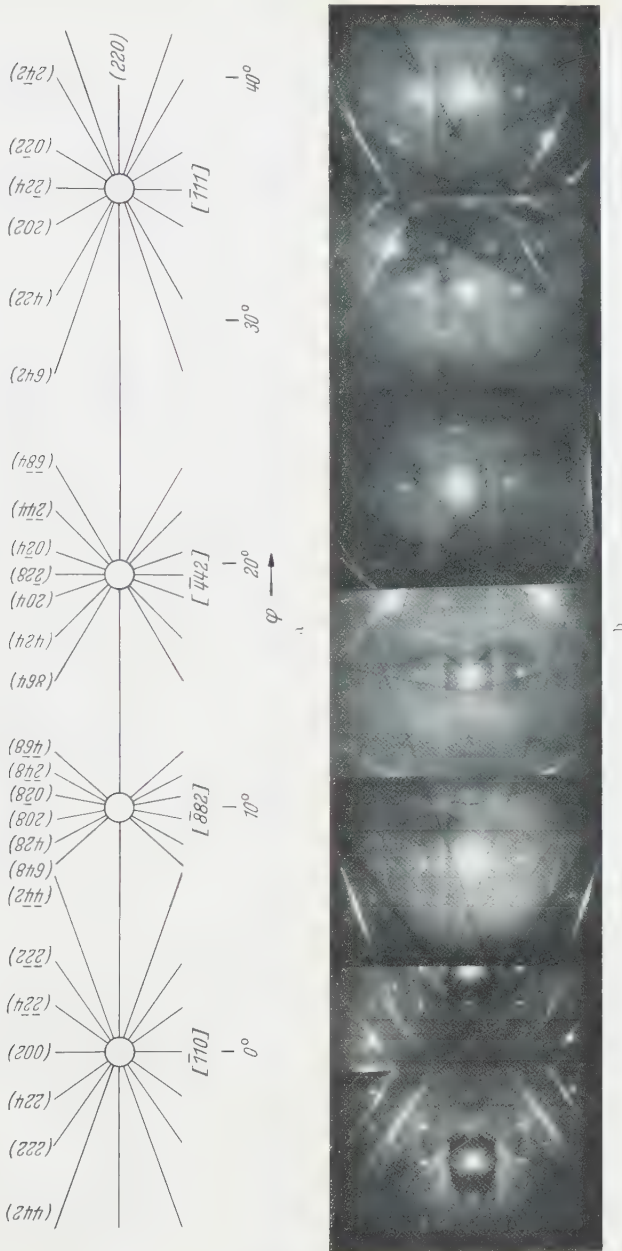


Fig. 9. a) Spuren der Netzebenen für verschiedene Zonenachsen; b) Photographische Aufnahmen des Kikuchi Diagramms

Diese Gleichungen erlauben es, die Lagen und gegenseitigen Orientierungen der Netzebenen auf dem Zylindermantel, der anschließend abgerollt wird, zu konstruieren (s. Fig. 9a). Zur Analyse des Kikuchi-Diagramms wird eine

Aufnahmeserie gemacht, bei der der Kristall für jede folgende Aufnahme um etwa 8° um die $[110]$ -Achse weitergedreht wird (Fig. 9b). Man erhält dann eine Reihe von aneinanderstoßenden Tangentialebenen um den Zylindermantel. Dieses Diagramm wird durch Vergleich mit dem konstruierten indiziert.

Die Richtungskosinus β_{01} , β_{02} , β_{03} erhält man aus dem Winkelabstand $\Delta\theta$ des Null-Reflexes von der Spur der (110) -Ebene und aus dem Winkelabstand $\Delta\varphi$ von einer Geraden, die durch die nächste Zone geht und senkrecht auf der (110) -Spur steht (vgl. Fig. 10):

$$\left. \begin{aligned} \beta_{01} &= -\frac{1}{\sqrt{2}} \{ \cos \Delta\theta \cos (\varphi + \Delta\varphi) - \sin \Delta\theta \} \\ \beta_{02} &= \frac{1}{\sqrt{2}} \{ \cos \Delta\theta \cos (\varphi + \Delta\varphi) + \sin \Delta\theta \} \\ \beta_{03} &= \cos \Delta\theta \sin (\varphi + \Delta\varphi) . \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

Der Anregungsfehler für die angeregte Interferenz wird am genauesten aus dem Winkelabstand des Reflexes g von der zugehörigen Kikuchi-Linie g ermittelt. Der Anregungsfehler ist nach Gl. (3)

$$\varrho_g = |\mathfrak{B}_g| (\sin \vartheta - \sin \vartheta_g) .$$

$\sin \vartheta$ ist die Projektion von $\mathfrak{S}_0^{(e)}$ auf \mathfrak{B}_g , und ϑ_g ist der exakte Bragg-Winkel. Nach Fig. 1 ist die Differenz beider Winkelfunktionen bei kleinen Winkeln etwa $\Delta\vartheta_g$. Damit wird der Anregungsfehler

$$\varrho_g \approx |\mathfrak{B}_g| \cdot \Delta\vartheta_g . \quad (18)$$

Hierbei ist auf das Vorzeichen von $\Delta\vartheta_g$ zu achten. Liegt g innerhalb der Ausbreitungskugel, so ist $\Delta\vartheta_g > 0$, liegt dagegen g außerhalb, so wird $\Delta\vartheta_g < 0$.

Die Wellenlänge der Elektronen wird ebenfalls aus dem Kikuchi-Diagramm bestimmt. Da die zur Ausmessung geeigneten Linienpaare im allgemeinen unsymmetrisch zum Null-Reflex liegen, müssen bei einer genauen Wellenlängenbestimmung diese Abweichungen berücksichtigt werden. Ist D der gegenseitige Abstand des Linienpaares in der Registrierebene und sind d_+ und d_- die Abstände der Linien vom Null-Reflex mit $d_+ + d_- = D$, so erhält man für die Wellenlänge mit $a =$ Gitterkonstante

$$\lambda = \frac{a}{\left| \sum_{i=1}^3 g_i^2 \right|} = \frac{D}{L} \left\{ 1 - \frac{1}{24} \left(\frac{D}{L} \right)^2 \right\} - \frac{1}{3} \cdot \frac{d_+^3 + d_-^3}{L^3} . \quad (19)$$

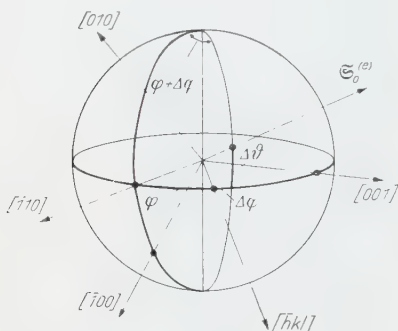


Fig. 10. Lage des Nullstrahls $\mathfrak{S}_0^{(e)}$ im Koordinatensystem des Kristalls

Aus dem Physikalischen Institut der Technischen Hochschule Aachen

Die Zündung in Wasserstoff im Bereich des Nahdurchschlags

Von

G. SCHMITZ und H. NIESTERS

Mit 11 Figuren im Text

(Eingegangen am 24. Mai 1961)

Es wird die Abhängigkeit der relativen Zündspannungssenkung $\Delta U/U$ und des Zündstromes I_z vom Fremdstrom I_0 in Wasserstoff bei Werten des Produktes aus dem Druck p und der Schlagweite L von 1,05 bis 0,54 Torr · cm untersucht. Das Zündspannungsminimum wurde bei Platinelektroden in Wasserstoff bei $p \cdot L = 1,04$ Torr · cm und $U_z = 294,0$ V gefunden.

Unterhalb des Zündspannungsminimums wurden zur Vermeidung von Umwegentladungen Elektroden verwendet, deren planparallele Teile eingedrückt waren, so daß der Elektrodenabstand im bestrahlten Entladungsraum größer war als am Elektrodenrand. Mit diesen Röhren konnte das erste und zweite Wurzelgesetz im Nahdurchschlag bis zu Fremdströmen von $I_0 = 10^{-8}$ Amp befriedigend bestätigt werden.

1. Ziel der Arbeit

In früheren Arbeiten^{1,2} wurden von W. ROGOWSKI und W. FUCKS die Wurzelgesetze für den Nah- und Weidurchschlag theoretisch hergeleitet. Die Gesetze besagen, daß die Zündspannung U_z bei merklicher Bestrahlung mit der Wurzel aus der Fremdstromdichte i_0 abnimmt:

$$\Delta U_z/U_{z0} = K_2 \sqrt{i_0}$$

und zweitens, daß die Zündstromdichte i_z mit der Wurzel aus der Fremdstromdichte wächst:

$$i_z = K_3 \sqrt{i_0}.$$

Diese Gesetze sind im Weidurchschlag von verschiedenen Autoren³⁻¹² für einige Gase bestätigt worden. Das Ziel dieser Arbeit soll sein, auch

¹ Fucks, W.: Z. Physik **92**, 467 (1934).

² ROGOWSKI, W., u. W. Fucks: Arch. Elektrotechn. **29**, 362 (1935).

³ ROGOWSKI, W., u. H. WALLRAFF: Z. Physik **97**, 758 (1935).

⁴ SCHADE, R.: Z. Physik **105**, 595 (1937); **108**, 353 (1938).

⁵ SCHÖFER, R.: Z. Physik **110**, 21 (1938).

⁶ Fucks, W., u. G. SCHUMACHER: Z. Physik **112**, 605 (1939).

⁷ Fucks, W., u. H. BONGARTZ: Z. techn. Phys. **20**, 205 (1939).

⁸ BRINKMANN, C.: Arch. Elektrotechn. **33**, 121 (1939).

⁹ Fucks, W., u. F. KETTEL: Z. Physik **116**, 657 (1940).

¹⁰ MEILI, E.: Helv. phys. Acta **18**, 79 (1945).

¹¹ Fucks, W.: Report of the internat. Symposium on electrical discharges in gases, Delft, 1955.

¹² Fucks, W. u. H. NIESTERS: Ann. Phys. **18**, 447 (1956).

im Nahdurchschlagsgebiet, in dem noch keine Messungen dieser Art vorliegen, eine Übereinstimmung mit den Wurzelgesetzen speziell in Wasserstoff bei Platinelektroden zu finden.

2. Meßröhre und Elektrodenform

Mit den Röhren, wie sie bisher im Weildurchschlag zur Messung benutzt wurden (Fig. 1), konnten Zündspannungen und Zündströme bis hinunter zum Zündspannungsminimum mit befriedigender Genauigkeit gemessen werden, jedoch erhielt man keinen steilen Anstieg der Zündspannungskurve im Nahdurchschlagsbereich, wie dies erwartet wurde, weil sich die Entladung bei $p \cdot L$ -Werten unterhalb des Minimums einen weiteren Weg in den Randgebieten der Elektroden suchen würde.

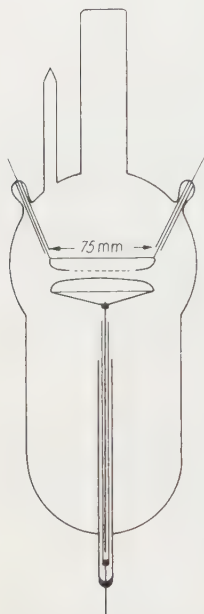


Fig. 1. Meßröhre mit Elektroden nach W. Rogowski zur Messung von Zündströmen und Zündspannungen im Weildurchschlag

Bei Zündspannungsmessungen im Nahdurchschlag wurde von FRICKE¹³ eine Röhre beschrieben, deren Elektroden durch übergeschobene Glaszylinder so abgeschildert sind, daß eine Entladung zwischen den Elektrodenflächen erfolgen muß. Eine ähnliche Röhre wurde hier entwickelt. Die Elektroden waren aus Platin, starr eingeschmolzen und hatten einen Durchmesser von 40 mm. Bei der Aufnahme der Zündspannungskurve wurde der Druck variiert. Mit diesem Röhrentyp konnten in Wasserstoff Zündspannungen im Nahdurchschlag bis zu 10^4 V gemessen werden, das entspricht einem $p \cdot L$ -Wert von $0,2 \text{ Torr} \cdot \text{cm}$ (vgl. Fig. 2)

Zur Messung des ersten Townsendschen Ionisierungskoeffizienten α und zur Messung von Zündspannungen und Zündströmen in Abhängigkeit von der Fremdbestrahlung I_0 und der Schlagweite L war es notwendig, den Elektrodenabstand zwischen den einzelnen Messungen verändern zu können. Aus diesem Grunde wurde von W. Fucks eine Elektrodenform für den Nahdurchschlag vorgeschlagen, wie sie aus Fig. 3 ersichtlich ist. Der Elektroden Durchmesser betrug 75 mm. Die Mittelteile der Elektroden, deren Ränder Rogowski-Profil besaßen, waren um 4 mm nach innen gedrückt und hatten einen Durchmesser von 20 mm. Die Anode war in diesem Teil durchlöchert, um die Kathode zentral bestrahlen zu können. Mit diesen Elektroden war es möglich, das Zündspannungsminimum in Wasserstoff bei Platinelektroden auf 294,0 V und $p \cdot L = 1,04 \text{ Torr} \cdot \text{cm}$

¹³ FRICKE, H.: Z. Physik **78**, 59 (1932).

genau festzulegen sowie Zündspannungen und Zündströme bis zu $p \cdot L = 0,54 \text{ Torr} \cdot \text{cm}$ zu messen.

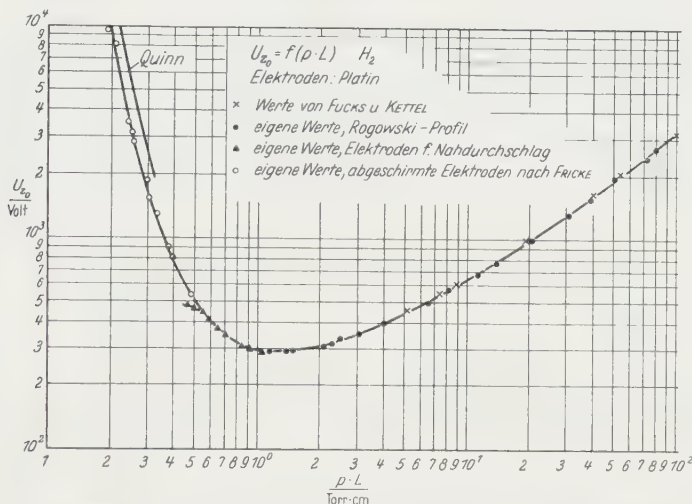


Fig. 2. Zündspannung in Wasserstoff als Funktion vom Produkt aus Druck und Elektrodenabstand mit Platin als Elektrodenmaterial

Die Glasteile der Meßröhren wurden vor dem Füllen mit Wasserstoff in einem Widerstandsofen ausgeheizt, die Metallteile wie Elektroden und deren Halterung in einer übergeschobenen Induktionsspule ausgewirbelt, wie dies in einer früheren Arbeit¹² beschrieben wurde.

3. Messungen

a) Fremdstrom und α -Messung. Als Fremdstrom I_0 bezeichnet man den Sättigungswert des photoelektrisch durch Bestrahlung der Kathode hervorgerufenen dunklen Vorstromes. Er kann gemessen werden, indem man den dunklen Vorstrom in Abhängigkeit von der Spannung aufträgt. Bei kleinen Drucken und schwachen Bestrahlungen erhält man eine Sättigung des dunklen Vorstromes, deren Größe der gesuchte Fremdstrom ist. Bei größeren Drucken und stärkerer Bestrahlung gibt es in Wasserstoff keine Sättigung mehr, weil der α -Prozeß schon vor Erreichen des Sättigungswertes einsetzt; man erhält dann nur noch einen Wendepunkt,

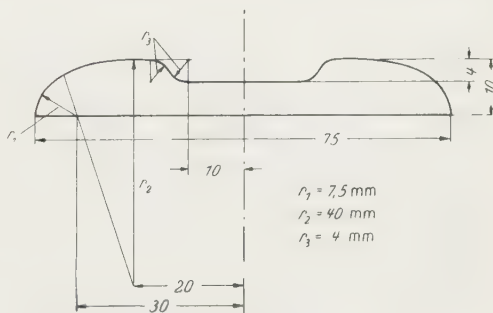


Fig. 3. Elektrodenprofil nach W. Fucks zur Messung von Zündströmen und Zündspannungen im Nahdurchschlagsgebiet

der aber keinesfalls ein Maß für den Fremdstrom ist. Man bestimmt im letzten Fall den Fremdstrom so, daß man ihn aus dem exponentiellen Anstieg nach dem Gesetz: $I = I_0(\exp \alpha d)$

berechnet. Zu diesem Zweck braucht man genaue Angaben über den ersten Ionisierungskoeffizienten α . Er wurde im vorliegenden Falle nach TOWNSEND bestimmt, ohne den Fremdstrom direkt zu messen, indem man den photoelektrisch erzeugten Strom in Abhängigkeit vom Elektrodenabstand L bei konstantem Druck p und konstanter Feldstärke E

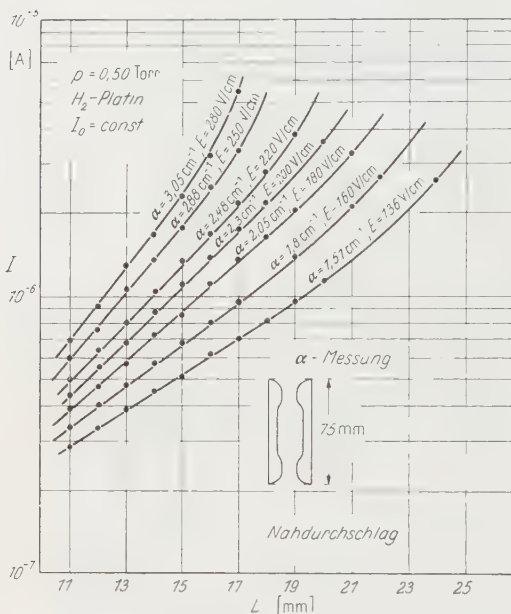


Fig. 4. Halblogarithmische Auftragung des dunklen Vorstromes I über dem Elektrodenabstand L mit der Feldstärke E als Parameter und konstanter Fremdstrahlung I_0

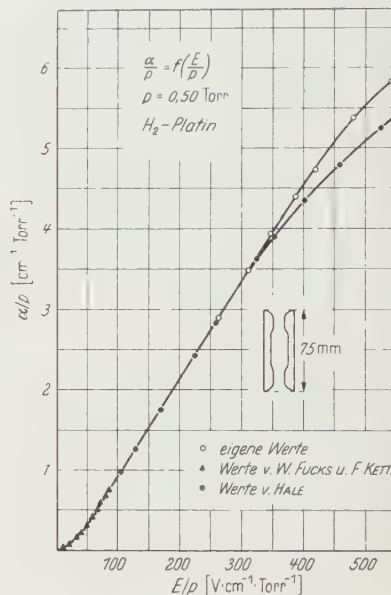


Fig. 5. Gemessene α/p -Werte als Funktion von E/p in Wasserstoff; Nahdurchschlags-elektroden nach W. Fucks

aufträgt. Bei halblogarithmischer Auftragung des Stromes gegen den Elektrodenabstand erhält man dann eine Gerade, deren Steigung gleich dem Wert des Ionisierungskoeffizienten α ist (Fig. 4). Mit den so erhaltenen α -Werten (Fig. 5) wurde der Fremdstrom berechnet. Ein Vergleich zwischen berechneten und gemessenen Fremdströmen bei schwacher Bestrahlung zeigte eine sehr gute Übereinstimmung.

b) Zündspannung und Zündstrom. Zur Messung von Zündspannung und Zündstrom sind von einigen Autoren^{4, 10} verschiedene Methoden angegeben worden, jedoch scheint die Aufnahme der Strom-Spannungskennlinie bei konstantem Druck und konstantem Elektrodenabstand für verschiedene Fremdstrahlung in der Nähe des Zündspannungsminimums und im Nahdurchschlag der einfachste und sicherste Weg zu

sein, Zündspannung und Zündstrom zu bestimmen. Meßeinrichtung und Schaltung hierzu sind schon in einer früheren Arbeit¹² besprochen worden.

In Fig. 6 sind verschiedene Strom-Spannungscharakteristiken bei einem Druck p von 0,5 Torr und einem Elektrodenabstand von 21 mm für verschiedene Fremdbestrahlungen wiedergegeben. Die Maxima der Kurven liefern die zu den Zündspannungen gehörenden Zündströme. Diese Zündpunkte liegen auf einer Geraden, der nach MEILI¹⁰ benannten Zündpunktlinie, die die vertikale Achse bei U_{z_0} schneidet (U_{z_0} = Zündspannung ohne Bestrahlung).

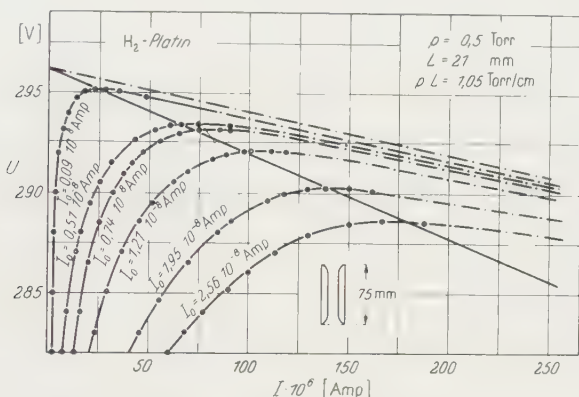


Fig. 6. Strom-Spannungscharakteristiken bei verschiedener Fremdbestrahlung I_0 ; Elektroden nach W. ROGOWSKI

4. Ergebnisse und Diskussion

Die Auswertungen der Strom-Spannungscharakteristiken ergaben eine eindeutige Bestätigung des 1. und 2. Wurzelgesetzes [Gl. (1) und (2)]. In den Fig. 7 und 8 ist die relative Zündspannungssenkung $\Delta U_{z_0}/U_{z_0}$ in Abhängigkeit von der Wurzel aus dem Fremdstrom aufgetragen und zwar wurden die Meßergebnisse in Fig. 7 mit Platinelektroden nach ROGOWSKI (s. Fig. 1) in Minimumnähe erzielt, die Ergebnisse in Fig. 8 mit Platinelektroden nach W. Fucks im Nahdurchschlag bis zu $p \cdot L = 0,54$ Torr · cm. In den Fig. 9 und 10 sind die Zündströme als Funktion von der Wurzel aus dem Fremdstrom aufgetragen. Auch hier sind die Messungen mit verschiedenen Elektrodenformen durchgeführt worden.

Bei den Messungen in der Nähe des Minimums mit den Elektrodenprofilen nach ROGOWSKI könnte eingewendet werden, daß man bei kleineren $p \cdot L$ -Werten als 1,04 Torr · cm (Minimum) keinen Anstieg der Zündspannung erhalten könne, da sich die Entladung einen weiteren Weg in den Randgebieten der Elektroden suchen würde. Dies ist auch der Fall, wenn die Entladungsstrecke in völliger Dunkelheit liegt. Allein schon der UV-Anteil des Tageslichts reichte aus, die Zündspannung nach

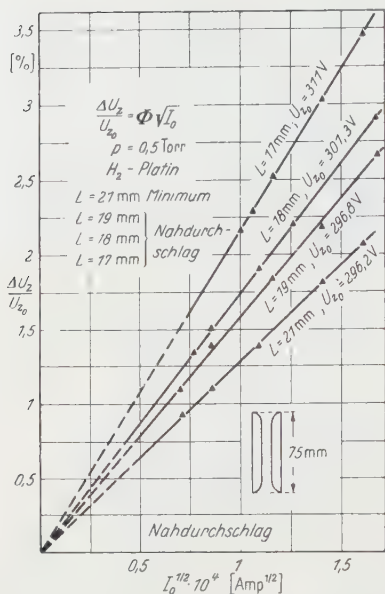


Fig. 7. Erstes Wurzelgesetz: Relative Zündspannungssenkung $\Delta U_z/U_{z0}$ als Funktion von der Wurzel aus dem Fremdstrom I_0 in Wasserstoff; Elektroden nach W. ROGOWSKI

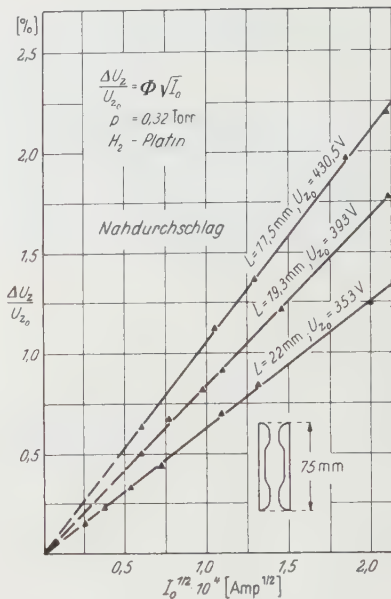


Fig. 8. Erstes Wurzelgesetz: Relative Zündspannungssenkung $\Delta U_z/U_{z0}$ als Funktion von der Wurzel aus dem Fremdstrom I_0 in Wasserstoff; Nahdurchschlagelektroden nach W. Fucks

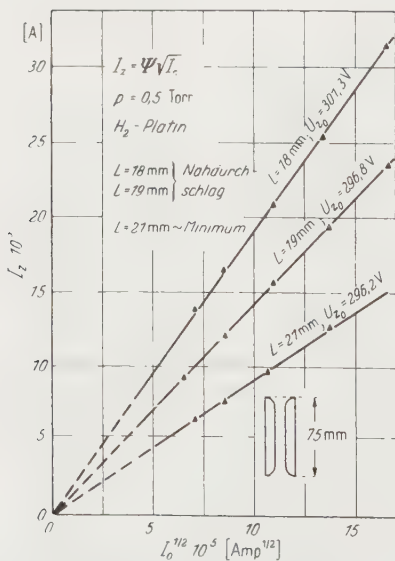


Fig. 9. Zweites Wurzelgesetz: Zündstrom I_z in Abhängigkeit von der Wurzel aus dem Fremdstrom I_0 ; Elektroden nach W. ROGOWSKI

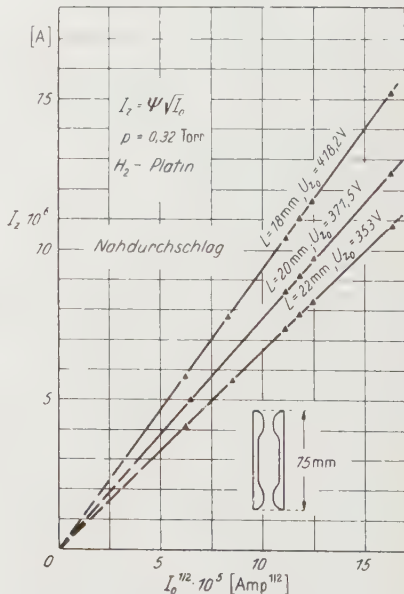


Fig. 10. Zweites Wurzelgesetz: Zündstrom I_z in Abhängigkeit von der Wurzel aus dem Fremdstrom I_0 ; Nahdurchschlagelektroden nach W. Fucks

Durchlaufen des Minimums wieder ansteigen zu lassen, und zwar entsprachen die gemessenen Zündspannungen bis zu $p \cdot L = 0,85 \text{ Torr} \cdot \text{cm}$ den mit den Nahdurchschlagelektroden nach W. Fucks gemessenen Zündspannungen. Dies ist so zu erklären: Während der Messungen hing die Meßröhre in einem gegen jeglichen Lichteinfall abgeschirmten Zylinder. Nur durch den an die Röhre angeschmolzenen Quarzstutzen konnte Licht durch die durchlöchernte Anode auf die Kathode fallen. Das Ansteigen der Zündspannung unterhalb des Minimums kann nur so gedeutet werden, daß die Zündung in dem planparallelen Teil der Kathode begünstigt war, der vom Tageslicht getroffen wurde, so daß die Umwegentladungen in den Rändern der Elektroden erst bei größeren Spannungen einsetzten und die Bestrahlung in der Mitte der Kathode keine Begünstigung mehr darstellte.

Bei der Untersuchung nach dem Ähnlichkeitsverhalten der Funktion K_2 des ersten Wurzelgesetzes wurde in früheren Arbeiten^{9,14} festgestellt, daß K_2 nicht so sehr vom Produkt aus Druck und Elektrodenabstand abhängt, wie dies nach den Ähnlichkeitsgesetzen erwartet wird, wenn nur ähnlichkeitsstreue Rückwirkungsprozesse bei der Zündung eine Rolle spielen, sondern vielmehr von der Schlagweite L allein. Aus den vorliegenden Messungen folgt im Nahdurchschlag ebenfalls eine ausgeprägte Abhängigkeit der Funktion K_2 vom Elektrodenabstand allein (Fig. 11). Nach Umrechnung der Fremdströme in die Fremdstromdichten ergibt sich für K_2 als Funktion von L aufgetragen eine nach größeren Elektrodenabständen hin abfallende Kurve, in die sich die K_2 -Werte der mit verschiedenen Elektrodenformen durchgeführten Messungen befriedigend einfügen. Abschließend kann man sagen, daß die Wurzelgesetze auch im Nahdurchschlag bis zu $p \cdot L = 0,54 \text{ Torr} \cdot \text{cm}$ als bestätigt angesehen werden können und die Brauchbarkeit der im Nahdurchschlag verwendeten Elektroden nach den Meßergebnissen in Fig. 11 erwiesen ist.

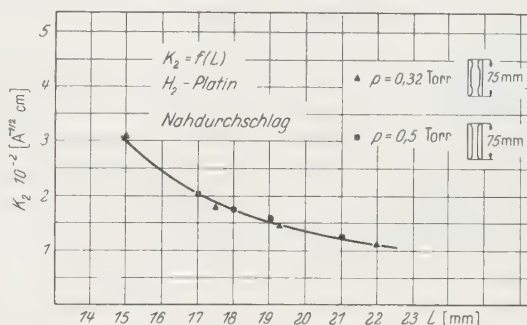


Fig. 11. Funktion K_2 aus dem ersten Wurzelgesetz in Abhängigkeit vom Elektrodenabstand L für zwei verschiedene Drücke mit unterschiedlichen Elektrodenformen in Wasserstoff

Für die Unterstützung bei der Durchführung der Versuche und für das fördernde Interesse an dem Fortgang der Arbeit sei Herrn Professor Dr.-Ing. W. Fucks an dieser Stelle herzlich gedankt.

¹⁴ Fucks, W.: Arch. Elektrotechn. 40, 16 (1950).

Aus dem II. Physikalischen Institut der Universität Göttingen

Die Vernichtung von Positronen im Fluge

Von

PETER KILIAN*

Mit 5 Figuren im Text

(Eingegangen am 22. Juni 1961)

The differential cross section at 0° for annihilation in flight of positrons has been measured with foils of lucite, Al, Cu, Ag, Sn, Au, and Pb. Positrons from Cu^{64} and Co^{56} with energies of 400, 600, 800, and 1000 keV were selected by means of a magnetic spectrometer of the Kofoed-Hansen type, and the annihilation was detected in a telescope consisting of three scintillation counters. The experimental results were compared with theoretical values computed from the two-quantum cross section by taking into account the effect of multiple scattering of the positrons. The agreement is good for light elements within a statistical accuracy of 10%. For heavy elements the experimental value was found to be 15% greater than the theoretical value which perhaps could be attributed to the one-quantum annihilation.

1. Einleitung

Wenn Positronen auf Materie auftreffen, werden sie zusammen mit Elektronen vernichtet, wobei in der Regel zwei γ -Quanten entstehen. Bei genügender Anfangsenergie des Positrons kann dieser Prozeß auch vor der Abbremsung mit meßbarer Häufigkeit erfolgen. Die zwei γ -Quanten haben dann im Laborsystem verschiedene Energien, und aus den Erhaltungssätzen für Energie und Impuls berechnet man für die Energie k des unter dem Winkel ϑ zur Flugrichtung des Positrons emittierten Quants

$$k = m_0 c^2 \left[1 - \left(\frac{E}{E + 2m_0 c^2} \right)^{\frac{1}{2}} \cos \vartheta \right]^{-1}$$

$m_0 c^2 = 511$ keV ist die Ruhenergie des Elektrons, E die kinetische Energie des Positrons.

Der Wirkungsquerschnitt für Zweiquantenvernichtung im Fluge von einem Positron an einem freien Elektron wurde von DIRAC¹ sowie BETHE² berechnet. Nach Transformation auf das Laborsystem³ ergibt

* D 7 (gekürzt).

¹ DIRAC, P. A. M.: Proc. Cambridge Phil. Soc. **26**, 361 (1929).

² BETHE, H. A.: Proc. Roy. Soc. A **150**, 129 (1935).

³ KENDALL, H. W., and M. DEUTSCH: Phys. Rev. **101**, 20 (1956).

sich für die Emission eines γ -Quants unter dem Winkel ϑ zur Flugrichtung des Positrons

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = r_0^2 \frac{\varepsilon + 1}{\eta} \left[\frac{\varepsilon + 3}{2(\varepsilon + 1)(\varepsilon - \eta \cos \vartheta)} - \frac{1}{(\varepsilon + 1 - \eta \cos \vartheta)^2} - \frac{(\varepsilon + 1 - \eta \cos \vartheta)^2}{2(\varepsilon + 1)^2(\varepsilon - \eta \cos \vartheta)^2} \right].$$

Darin bedeuten:

- ε Gesamtenergie des Positrons in der Einheit $m_0 c^2$;
- η Impuls des Positrons in der Einheit $m_0 c$;
- $r_0 = 2,82 \cdot 10^{-13}$ cm, klassischer Elektronenradius;
- $d\sigma/d\Omega$ in cm^2 pro Raumwinkeleinheit und Elektron, differentieller Wirkungsquerschnitt für Zweiquantenvernichtung im Laborsystem;
- ϑ Winkel zwischen der Richtung des Positrons und der des Vernichtungsquants.

Bei Positronenenergien der Größenordnung MeV ist durch die Formel eine starke Bündelung der Vernichtungsquanten in Vorwärtsrichtung gegeben. Die Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes von der Energie ist in dem Bereich verhältnismäßig gering. Eine Abhängigkeit von der Materialart (Z) kann nicht auftreten, weil für die Rechnung freie Elektronen angenommen wurden. In den tatsächlichen Experimenten dagegen sind die Elektronen immer mehr oder weniger stark gebunden, so daß in Messungen des Wirkungsquerschnittes eine Abhängigkeit von der Materialart möglich ist.

Der Wirkungsquerschnitt für die Vernichtung von Positronen im Fluge wurde in den letzten Jahren von verschiedenen Autoren experimentell geprüft. KENDALL und DEUTSCH³ untersuchten für Positronen zwischen 0,765 und 3,33 MeV Energie die Abhängigkeit von Energie und Winkel. Sie benutzten eine Koinzidenzanordnung zum gleichzeitigen Nachweis des Positrons vor der Zerstrahlung in einem Anthrazen-Szintillationskristall und eines der beiden Vernichtungsquanten in einem NaJ-Szintillationskristall. Mit dieser Methode, die sich nur auf die Zerstrahlung von Positronen in Anthrazen anwenden läßt, fanden sie Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie innerhalb von 5 % Meßgenauigkeit. Ebenso wurde befriedigende Übereinstimmung gefunden von anderen Autoren bei Untersuchungen mit Positronen sehr hoher Energie⁴⁻⁶.

Die Vernichtung von Positronen auch in schweren Elementen, in denen die Elektronen nicht unbedingt als frei angesehen werden können, wurde untersucht von GERHART, CARLSON und SHERR⁷. Hierbei wurde

⁴ COLGATE, S. A., and F. C. GILBERT: Phys. Rev. **89**, 790 (1953).

⁵ MALAMUD, E., u. R. WEILL: Helv. phys. Acta **33**, 991 (1960).

⁶ SEWARD, F. D., C. R. HATCHER and S. C. FULTZ: Phys. Rev. **121**, 605 (1961).

⁷ GERHART, J. B., B. C. CARLSON and R. SHERR: Phys. Rev. **94**, 917 (1954).

mit einem Szintillationszähler das γ -Spektrum gemessen, das beim Abbremsen von Positronen aus dem radioaktiven Zerfall von Ne^{19} und A^{35} in verschiedenen Materialien auftrat. Der Vergleich der Meßergebnisse mit der Theorie wurde erschwert durch die in der Versuchsanordnung begründete Mittelung über alle vorkommenden Positronenenergien und -richtungen. Die Abweichungen zwischen den gemessenen und den berechneten Spektren waren zum Teil erheblich und betrugen bis zu 30%.

Es erschien daher angebracht, die Vernichtung von Positronen im Fluge systematisch mit Elementen im ganzen Bereich von Z zu untersuchen und eine für die Auswertung vorteilhaftere Anordnung zu verwenden. Günstigere Verhältnisse wurden dadurch erreicht, daß mit einem magnetischen Spektrometer Positronen einheitlicher Energie und Richtung ausgewählt wurden. Ferner wurden dünne Schichten des in Frage kommenden Materials verwendet, und außerdem wurde das Verschwinden des Positrons und das Auftreten des Vernichtungsquants gleichzeitig nachgewiesen.

2. Apparatur

Die experimentelle Anordnung ist schematisch in Fig. 1 dargestellt. Durch das magnetische Spektrometer werden von der Quelle Positronen bestimmter Energie auf die auswechselbare Folie F aus dem zu untersuchenden Material gelenkt. Diese Folie ist umgeben von zwei

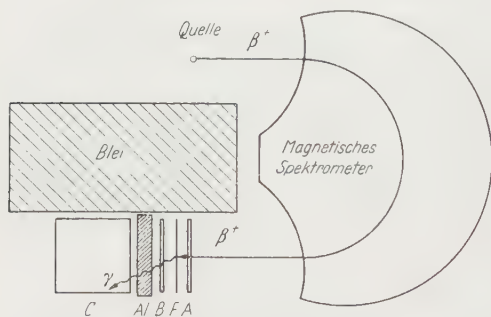


Fig. 1. Versuchsaufbau schematisch. Positronen aus der Quelle werden durch das magnetische Sektorfeldspektrometer auf das System der Szintillationszähler gelenkt. A und B registrieren durch Antikoinzidenz $A\bar{B}$ das Verschwinden des Positrons in der Folie F , C weist nach vorn gehende Vernichtungsquanten hoher Energie nach

Szintillationszählern A und B . Diese bestanden aus Anthrazenschichten von $20 \times 20 \text{ mm}^2$ Fläche und 0,25 bzw. 1,5 mm Dicke, welche durch geeignet geformte Lichtleiter mit den Photokathoden von Photomultipliern verbunden waren. Wenn ein Positron A , F und B durchquert, ohne zu zerstrahlen, wird eine Koinzidenz AB angezeigt; wenn es in F verschwindet, erfolgt eine Antikoinzidenz $A\bar{B}$.

Um davon diejenigen Antikoinzidenzen $A\bar{B}$ auszuschneiden, die durch Streuung des Positrons in F um große Winkel entstanden sind, wird das Vernichtungsereignis identifiziert durch den gleichzeitigen Nachweis des nach vorn gehenden Vernichtungsquants im Szintillationszähler C , einem zylindrischen NaJ-Kristall von 5 cm Höhe und 5 cm Durchmesser.

Die elektronische Schaltung unterdrückt fernerhin alle Impulse mit kleinerer Impulshöhe als 660 keV und scheidet so alle Impulse von der Vernichtung in Ruhe aus. Dadurch wird die Zahl der Antikoinzidenzen $A\bar{B}C$, dividiert durch die Zahl der in A auftreffenden Positronen, $A\bar{B}C/A = W_{\text{exp}}$ ein Maß für den differentiellen Wirkungsquerschnitt für Zerstrahlung im Fluge, gemittelt über den Winkelbereich des Szintillationszählers C . Fig. 2 zeigt die Anordnung der drei Szintillationszähler A , B und C .

Das magnetische Spektrometer bestand aus einem Sektor des von KOFOED-HANSEN^{8, 9} angegebenen Typs. Es wurde verwendet mit 1,2 % Transmission und 4 % Impulsaufhebungsvermögen. Die dünnen Anthrazenschichten wurden nach einem von LIPSETT¹⁰ angegebenen Verfahren durch Auskristallisieren von Anthrazen aus einer Lösung in Dimethylformamid gewonnen. Für die Anthrazenszintillatoren A und B wurden Photomultiplier des Typs Du Mont 6467 verwendet, für den NaJ-Kristall (Szintillationszähler C) DuMont 6363.

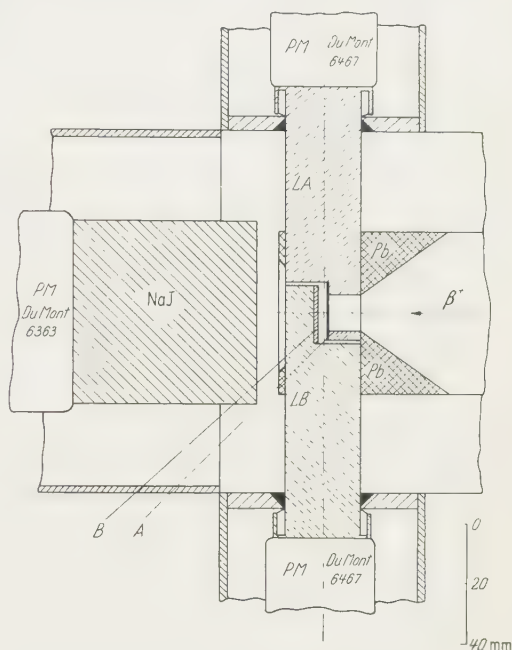


Fig. 2. System der Szintillationszähler. A Anthrazen $0,25 \times 20 \times 20 \text{ mm}^3$; B Anthrazen $1,5 \times 20 \times 20 \text{ mm}^3$; NaJ-Kristall 5 cm Durchmesser 5 cm Höhe; LA und LB Lichtleiter; Pb Bleiabschirmung; PM Photomultiplier

Der elektronische Teil der Apparatur zur Verarbeitung der Impulse aus den drei Szintillationszählern ist im Blockschaltbild in Fig. 3 dargestellt. Die Impulse von A und C wurden zunächst in einer schnellen Koinzidenz von $4 \cdot 10^{-8} \text{ sec}$ Auflösungsvermögen vereinigt. Diese bestand aus der Röhre E 80 T, die mit kurzen, dreieckförmigen Triggerimpulsen¹¹ betrieben wurde. Ferner wurde der Impuls von der 9. Dynode

⁸ KOFOED-HANSEN, O., M. LINDHARD, O. B. NIELSEN: Dan. Mat. Fys. Medd. **25**, Nr. 16 (1950).

⁹ NIELSEN, O. B., O. KOFOED-HANSEN: Dan. Mat. Fys. Medd. **29**, Nr. 6 (1955).

¹⁰ LIPSETT, F. R.: J. Canad. Phys. **35**, 284 (1957).

¹¹ DAVIDON, W. C., and R. B. FRANK: Rev. Sci. Instrum. **27**, 15 (1956).

des Multipliers C in üblicher Weise verstärkt und in einen Diskriminator¹² gegeben, ebenso der Impuls des Multipliers B . Die Ausgangsimpulse der schnellen Koinzidenz AC und der beiden Diskriminatoren B und C wurden in die langsame Antikoinzidenz $A\bar{B}C$ gegeben, die wiederum mit

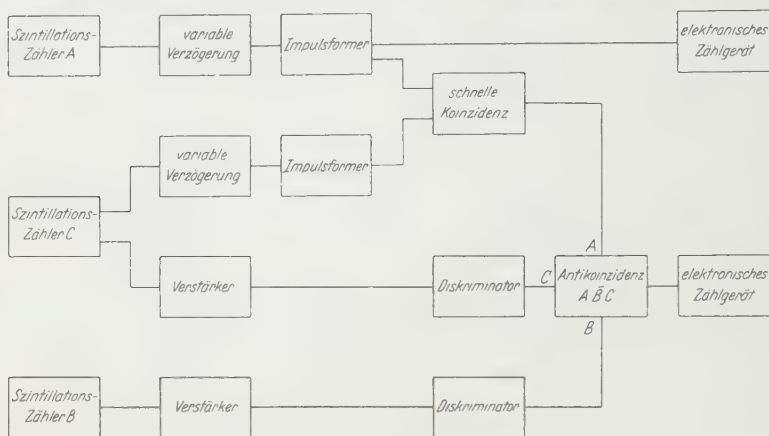


Fig. 3. Blockschaltbild der Elektronik

der Röhre E 80 T ausgeführt wurde. Die Ausgangsimpulse der Antikoinzidenz $A\bar{B}C$ und der Impuls des Triggers A schließlich wurden mit elektronischen E 1 T-Zählgeräten üblicher Bauart registriert.

3. Messungen

Die Messungen wurden ausgeführt mit Positronen von Cu^{64} und Co^{56} . Die Cu^{64} -Präparate bestanden aus dünnen Kupferscheiben, die durch Bestrahlung im Reaktor Geesthacht Aktivitäten zwischen 5 und 20 mC

Tabelle

Material	Ordnungszahl	Flächendichte (Masse)	Flächendichte (Elektronen)
Plexiglas . .	(6)	39,2 mg/cm ²	12,6 · 10 ²¹ El/cm ²
Aluminium .	13	42,8	12,4
Kupfer . . .	29	44,3	12,2
Silber . . .	47	45,8	12,1
Zinn	50	42,1	10,7
Gold	79	51,9	12,5
Blei	82	52,2	12,5

erhalten hatten. Co^{56} * war mit etwa 0,5 mC Aktivität auf der Oberfläche eines Eisenstückes vorhanden. Die Messungen wurden durchgeführt mit Cu^{64} bei den Energien 400 und 600 keV und Co^{56} bei den

* Bezogen von der Kernreaktor-Gesellschaft, Karlsruhe

¹² FAIRSTEIN, E.: Rev. Sci. Instrum. **27**, 549 (1956).

Energien 400, 600, 800 und 1000 keV. Die Daten der verwendeten Folien sind in der Tabelle aufgeführt.

Gemessen wurde für je 10^6 Positronenimpulse in A die Zahl der Antikoinzidenzen $A\bar{B}C$, wobei nur Impulse berücksichtigt wurden mit größerer Impulshöhe, als 660 keV Energie entspricht. Die Diskriminierungsschwelle von C wurde eingestellt und häufig nachgeeicht mit der γ -Strahlung eines starken Cs^{137} -Präparates. In Fig. 4a—d sind die Meßwerte

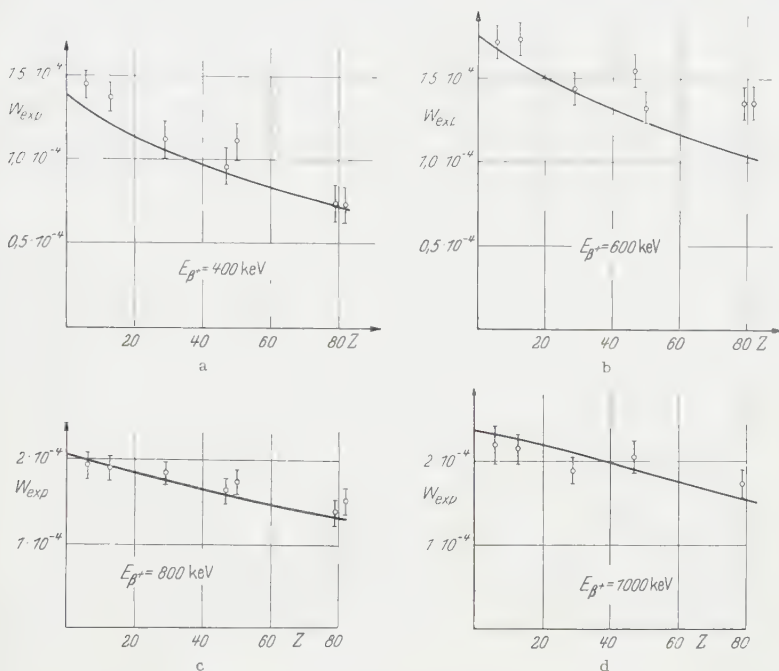


Fig. 4a—d. Ergebnis der Messung der Vernichtung im Fluge von Positronen (Energie E_{β^+}) in Folien gleicher Dicke ($12,5 \times 10^{21}$ El/cm², ungefähr 40 mg/cm²) aus verschiedenen Materialien. Aufgetragen ist $W_{\text{exp}} = A\bar{B}C/A$, korrigiert nach dem in 1 bis 4 beschriebenen Verfahren. Die eingetragenen Kurven sind die zu erwartenden Werte W_{th} bei Unabhängigkeit der Zerstrahlungswahrscheinlichkeit von Z .

$W_{\text{exp}} = A\bar{B}C/A$ aufgetragen nach Abzug des im folgenden zu besprechenden Untergrundes.

Der Untergrund kam zustande durch verschiedene durch die Apparatur und konkurrierende Prozesse bedingte Effekte, deren Anteil jeweils für sich bestimmt werden mußte. Es wurden berücksichtigt:

1. Zufällige Koinzidenzen,
2. Vernichtung der Positronen in den der Folie zugekehrten Oberflächenschichten der Szintillatoren A und B .
3. Bremsstrahlung der Positronen in der Folie F .
4. Effekte durch Streuung der Positronen in der Folie F .

Untergrund 1 und 2 wurde durch Leermessungen ohne Folie erhalten, die zwischen aufeinanderfolgende Messungen mit verschiedenen Folien eingeschaltet wurden. Es ergab sich dieselbe Größenordnung wie für die Vernichtung in der Folie selbst; z.B. wurde bei $E = 600$ keV (Cu^{64}) und Plexiglas gemessen mit Folie $(A\bar{B}C/A)_{F+U} = 3,5 \cdot 10^{-4}$ und ohne Folie $(A\bar{B}C/A)_{U_{1+2}} = 1,6 \cdot 10^{-4}$.

Der Bremsstrahlungsanteil (Untergrund 3) wurde bestimmt aus Messungen mit Elektronen eines P^{32} -Präparates. Er betrug unter den ungünstigsten Umständen (1000 keV und Au) 10% der Koinzidenzen durch Vernichtung im Fluge in der Folie und war bei den leichten Elementen und bei kleineren Energien zu vernachlässigen.

Durch Streuung (Untergrund 4) konnten auf zwei Arten unerwünschte Antikoinzidenzen $A\bar{B}C$ entstehen. Erstens konnte bei Positronen von Co^{56} eines der γ -Quanten, die in Koinzidenz mit dem Positron vom Co^{56} -Kern emittiert werden (850 und 1250 keV), trotz der Abschirmung in C gelangen und zusammen mit einer durch Streuung entstandenen Antikoinzidenz $A\bar{B}$ eine Antikoinzidenz $A\bar{B}C$ ergeben. Zweitens konnte sowohl bei Cu^{64} wie bei Co^{56} das gestreute Positron in der Wand der Vakuumkammer nach der Abbremsung vernichtet werden, wobei eines der Quanten direkt und das andere durch Streuung in C gelangte und zum Impuls des ersten addiert wurde. In beiden Fällen war der Untergrund $(A\bar{B}C/A)_{U_4}$ proportional zu $A\bar{B}$ und konnte durch Messung der Streuantikoinzidenzen $A\bar{B}$ berücksichtigt werden, nachdem der Proportionalitätsfaktor vorher durch geeignete Experimente bestimmt worden war.

Die Anzeige des Zählgerätes A wurde außerdem auf Zählverluste und zusätzliche Impulse durch das thermische Rauschen des Photomultipliers A korrigiert. Die Zählverluste betrugen maximal 7%, der Anteil der Rauschimpulse lag zwischen 5 und 10% der Positronenzählrate.

4. Diskussion

Die Messungen ergeben deutlich kleinere Werte $W_{\text{exp}} = A\bar{B}C/A$ bei schweren Elementen. Es zeigt sich aber, daß dieser Abfall schon allein durch die verschieden starke Streuung der Positronen durch leichte und schwere Elemente erklärt werden kann. Da nämlich bei den in Frage kommenden Energien die Emission des Vernichtungsquants überwiegend in Vorwärtsrichtung erfolgt, müssen viele Quanten registriert werden, wenn die Positronen wenig gestreut werden und ihre ursprüngliche Richtung beibehalten. Wenn sie aber im Augenblick der Vernichtung bereits stark abgelenkt sind, gehen die Vernichtungsquanten zumeist am Nachweiskristall vorbei und werden nicht berücksichtigt.

Zum Vergleich der Meßergebnisse mit dem theoretischen Wirkungsquerschnitt wurde dieser unter Berücksichtigung der Versuchsdaten auf das Experiment umgerechnet. Zunächst ohne Berücksichtigung der

Streuung wurde die Wahrscheinlichkeit für den Nachweis eines Vernichtungsereignisses $W(\alpha)$ berechnet, die wegen der eingangs erwähnten Vorwärtsbündelung der Vernichtungsquanten um die Positronenrichtung vom Winkel α zwischen der Symmetrieachse und der Positronenflugrichtung abhängt. $W(\alpha)$ ergibt sich aus dem differentiellen Wirkungsquerschnitt $d\sigma/d\Omega$, der Foliendicke M und der Ansprechwahrscheinlichkeit u des NaJ-Szintillationszählers durch Integration über den vom NaJ-Kristall eingenommenen Raumwinkel zu

$$W(\alpha) = \int_{\Omega_c} \frac{d\sigma}{d\Omega} \cdot M \cdot u \cdot d\Omega.$$

Die Ansprechwahrscheinlichkeit u wurde experimentell bestimmt mit geeichten Präparaten von Cs^{137} , Mn^{54} , Co^{60} und Na^{22} am Ort der Folie und für die dazwischenliegenden Werte der Energie der γ -Quanten interpoliert. Das gleiche Ergebnis lieferte eine zweite Bestimmung, bei der lediglich das Verhältnis der Impulszahl oberhalb einer Impulshöhe von 660 keV zu der Gesamtzahl der Impulse aus den mit den erwähnten Präparaten gemessenen Impulshöhenspektren entnommen wurde und die Gesamtansprechwahrscheinlichkeit in der üblichen Weise aus den Abmessungen des Kristalls und dem Absorptionskoeffizienten für γ -Quanten in NaJ berechnet wurde. Der unterschiedlichen Streuung der Positronen in den einzelnen Folien wurde dadurch Rechnung getragen, daß für jede Folie eine Verteilung der Positronen auf die verschiedenen Richtungen $R(\alpha) d\Omega_\alpha$ angesetzt wurde. Für diese Verteilung wurde in üblicher Weise eine Gauß-Verteilung angenommen, deren Parameter aus dem Einfluß der Streuung in der Anthrazenschicht A , der Folie F und der ursprünglichen Richtungsverteilung am Spektrometerausgang berechnet werden mußte. Hierzu wurde die von KNECHT und BOTHE¹³ angegebene Methode benutzt. Ein erster Näherungswert λ_1 für den Parameter λ einer Streuverteilung von Elektronen der kinetischen Energie E hinter einer Folie der Dicke x (in mg/cm^2), Ordnungszahl Z und Atomgewicht A ist hiernach gegeben durch

$$\lambda_1 = \frac{0,65 \text{ MeV}}{E} \cdot \frac{E + m_0 c^2}{E + 2 m_0 c^2} Z \sqrt{\frac{x}{A}}.$$

Dieser Näherungswert wird verbessert durch Korrekturen, die von den erwähnten Autoren experimentell bestimmt worden waren. Da dieses Verfahren für Elektronen gilt, wurde der so erhaltene Parameter außerdem noch der geringeren Streuung von Positronen entsprechend verkleinert.

Der mit dem gemessenen Wert W_{exp} zu vergleichende theoretische Wert W_{th} wurde schließlich durch „Faltung“ von $W(\alpha)$ mit den entsprechenden Winkelverteilungen $R(\alpha) d\Omega_\alpha$ berechnet.

$$W_{\text{th}} = \int W(\alpha) R(\alpha) d\Omega_\alpha.$$

¹³ KNECHT, O., u. W. BOTHE: Z. Naturforsch. **8a**, 805 (1953).

Die Ergebnisse der Rechnung, die mit einer Genauigkeit von 5 % numerisch durchgeführt wurde, sind als durchlaufende Kurven zum Vergleich mit den Meßergebnissen in die Figuren 4a—d eingetragen. Im Rahmen der statistischen Fehler der Meßwerte zwischen 7 und 15 % und der Rechengenauigkeit von 5 % ergibt sich gute Übereinstimmung. Für den Quotienten $W_{\text{exp}}/W_{\text{th}}$ aus Meßwert und berechneten Wert, gemittelt über alle Meßpunkte, ergibt sich $(W_{\text{exp}}/W_{\text{th}})_m = 1,07 \pm 0,10$. Wenn lediglich die leichten Elemente herangezogen werden, erhält man $(W_{\text{exp}}/W_{\text{th}})_m = 1,02 \pm 0,08$.

Zur Feststellung einer möglichen Z -Abhängigkeit wurden jeweils für ein Element die vier Werte $W_{\text{exp}}/W_{\text{th}}$ bei verschiedenen Energien gemittelt. Das Ergebnis $(W_{\text{exp}}/W_{\text{th}})_{mE}$ ist mit den mittleren statistischen

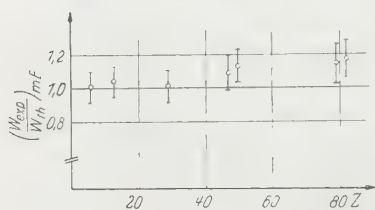


Fig. 5. Verhältnis $W_{\text{exp}}/W_{\text{th}}$, gemittelt über alle Energiewerte für die verschiedenen Materialien

Fehlern des Einzelwertes in Fig. 5 aufgetragen. Die Werte nehmen bei schweren Elementen geringfügig zu; der gemessene Wert W_{exp} scheint dort größer zu sein als der aus der Zweiquantenvernichtung und der Annahme freier Elektronen bei Berücksichtigung der Streuung berechnete Wert W_{th} . Dieses Verhalten steht nicht im Einklang mit der Erwartung, daß bei großem Z die

kernnahen Elektronen für die positiv geladenen Positronen schlechter erreichbar sind und für die Zerstrahlung weniger zur Verfügung stehen.

Eine Möglichkeit zur Erklärung des systematischen Ganges mit Z besteht darin, daß die in die Rechnung eingehenden Streuverteilungen der Positronen nur recht ungenau ermittelt werden konnten. Wenn die verwendete Methode bei den vorhandenen Schichtdicken eine zu starke Auffächerung des Strahles der Positronen ergibt, wird ein zu kleiner Wert W_{th} berechnet und eine Zunahme der Quotienten $W_{\text{exp}}/W_{\text{th}}$ erhalten.

Weiterhin muß zur Erklärung die Einquantenvernichtung von Positronen im Fluge herangezogen werden, für die eine starke Z -Abhängigkeit proportional zu Z^5 berechnet wird². Für Blei sollte der zusätzliche Beitrag durch Einquantenvernichtung zwischen 5 und 10 % der Zweiquantenvernichtung liegen. Diese Größenordnung ist vereinbar mit der im Experiment gefundenen Diskrepanz zwischen W_{exp} und W_{th} . Wegen der statistischen Fehler der Meßwerte und der erwähnten Unsicherheit in den berechneten Werten kann daraus aber nicht auf die Existenz der Einquantenvernichtung geschlossen werden.

Für die Anregung zu dieser Arbeit sowie für viele wertvolle Ratschläge möchte ich Herrn Professor Dr. A. FLAMMERSFELD herzlich danken. Weiterhin danke ich Herrn Professor Dr. E. BAGGE und den Herren von der Reaktorstation Geesthacht für die Durchführung einiger Bestrahlungen.

Aus dem Institut für Angewandte Physik der Universität Tübingen

Eine Erweiterung des Cornu-Diagramms
auf den Fall einer teildurchlässigen
und phasenschiebenden Halbebene

Von
F. LENZ

Mit 2 Figuren im Text
(Eingegangen am 6. Juni 1961)

Cornu's diagram for the graphical evaluation of the intensity distribution in the Fresnel diffraction phenomena behind an opaque half-plane is generalized to the case of diffraction by a half-plane with arbitrary values of transparency and phase-shift.

Bekanntlich läßt sich die Intensitätsverteilung, die sich nach der Kirchhoffschen Formel für die Umgebung der geometrisch-optischen Schattengrenze einer undurchlässigen Halbebene ergibt, aus einer graphischen Darstellung der Fresnelschen Integrale

$$C(v) = \int_0^v \cos\left(\frac{\pi}{2} t^2\right) dt; \quad S(v) = \int_0^v \sin\left(\frac{\pi}{2} t^2\right) dt, \quad (1)$$

der Cornuschen Spirale ablesen. Hier soll gezeigt werden, daß eine einfache Ergänzung dieser graphischen Darstellung das Ablesen der Intensitätsverteilung auch für den Fall ermöglicht, daß die Halbebene eine endliche Durchlässigkeit besitzt und eine endliche Phasenschiebung bewirkt.

Die von einer Quelle im Punkt z_0 ausgehenden Wellen werden durch einen Schirm in der Ebene $z=0$ beeinflusst, der für $x<0$ eine Phasenschiebung δ und eine Amplitudenschwächung um den Faktor $e^{-\sigma}$ bewirkt, während für $x>0$ die Wellen unbeeinflusst passieren (Fig. 1). Man erhält dann in der Beobachtungsebene $z=z_B$ in bekannter Weise durch

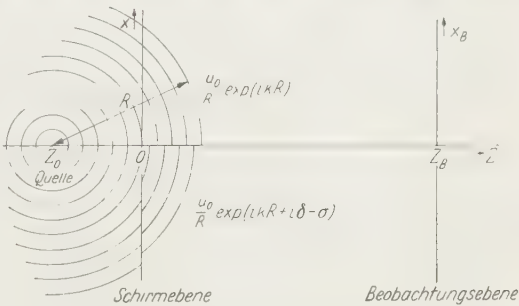


Fig. 1. Beugung einer Kugelwelle an einer teildurchlässigen phasenschiebenden Halbebene

Auswerten der Kirchhoffschen Formel eine Intensitätsverteilung

$$I = \frac{|u_0|^2}{(z_B - z_0)^2} e^{-\sigma} (\operatorname{ch} \sigma - \cos \delta) [(C(v) - X)^2 + (S(v) - Y)^2], \quad (2)$$

wobei

$$v = \sqrt{\frac{2}{\lambda}} \frac{x_B}{z_B \sqrt{\left| \frac{1}{z_B} - \frac{1}{z_0} \right|}} \quad (3)$$

$$X = -\frac{1}{2} \frac{\operatorname{sh} \sigma - \sin \delta}{\operatorname{ch} \sigma - \cos \delta}; \quad Y = -\frac{1}{2} \frac{\operatorname{sh} \sigma + \sin \delta}{\operatorname{ch} \sigma - \cos \delta}. \quad (4)$$

Diese Beziehungen gelten unverändert auch dann, wenn $z_0 > z_B$, d.h. wenn durch den Schirm eine auf ein hinter der Beobachtungsebene liegendes Zentrum konvergierende Welle beeinflusst wird. Liegt dagegen das Konvergenzzentrum zwischen Schirm und Beobachtungsebene, so gilt an Stelle von (2)

$$I = \frac{|u_0|^2}{(z_B - z_0)^2} e^{-\sigma} (\operatorname{ch} \sigma - \cos \delta) [(C(v) + Y)^2 + (S(v) + X)^2] \quad (5)$$

mit derselben Bedeutung der Größen v , X , Y .

Die zur Intensität nach (2) proportionale Funktion

$$I(v, \sigma, \delta) = [C(v) - X(\sigma, \delta)]^2 + [S(v) - Y(\sigma, \delta)]^2 \quad (6)$$

kann für beliebige σ und δ bequem als Abstandquadrat des Punktes (X, Y) vom laufenden Punkt v auf der Cornu-Spirale aus einem Diagramm abgelesen werden, in das außer der bekannten Darstellung der Cornu-Spirale noch die beiden zueinander orthogonalen Kreisscharen $\sigma = \text{const}$ und $\delta = \text{const}$ eingezeichnet sind (Fig. 2).

Die Mittelpunkte der Kreise $\delta = \text{const}$ haben die Koordinaten $X_m = \frac{1}{2} \cotg \delta$; $Y_m = -\frac{1}{2} \cotg \delta$ und die Radien betragen $1/\sqrt{2} \sin \delta$. Diese Kreise gehen also alle durch die Punkte $(+\frac{1}{2}; +\frac{1}{2})$ und $(-\frac{1}{2}; -\frac{1}{2})$.

Die Mittelpunkte der Kreise $\sigma = \text{const}$ haben die Koordinaten $X_m = \frac{1}{2} \coth \sigma$; $Y_m = -\frac{1}{2} \coth \sigma$ und die Radien betragen $1/\sqrt{2} \operatorname{sh} \sigma$.

Wir haben für die Darstellung in Fig. 2 das Koordinatensystem gegenüber der üblichen Darstellung um 45° gedreht und um den Faktor $\sqrt{2}$ gestreckt. Dadurch kommen die Enden der Cornu-Spirale auf die Punkte ± 1 der Abszissenachse zu liegen, und die Darstellung der Kreisscharen wird einfacher. Ersetzt man nämlich C , S , X und Y durch

$$c = S + C; \quad s = S - C; \quad x = X + Y; \quad y = Y - X, \quad (7)$$

so erhält man statt (2)

$$I = \frac{|u_0|^2}{(z_B - z_0)^2} \frac{e^{-\sigma}}{2} (\operatorname{ch} \sigma - \cos \delta) [(c(v) - x(\sigma, \delta))^2 + (s(v) - y(\sigma, \delta))^2], \quad (8)$$

wobei nach (4)

$$x(\sigma, \delta) = -\frac{\operatorname{sh} \sigma}{\operatorname{ch} \sigma - \cos \delta}; \quad y(\sigma, \delta) = -\frac{\sin \delta}{\operatorname{ch} \sigma - \cos \delta}. \quad (9)$$

Die Mittelpunkte der Kreise $\delta = \text{const}$ liegen in dieser Darstellung auf der Ordinatenachse an den Stellen $y_m = \cotg \delta$, und die Radien betragen $1/\sin \delta$.

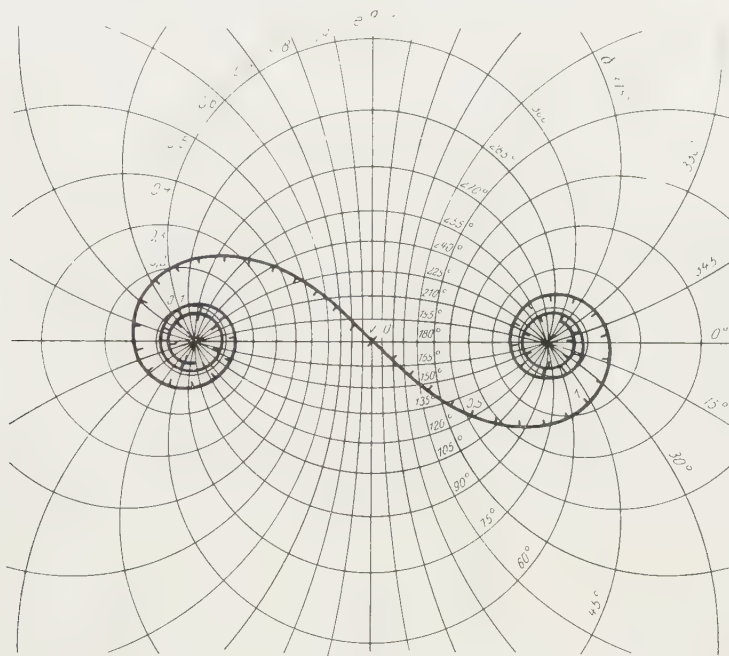


Fig. 2. Cornu-Spirale zur Ablesung der Amplitude und Phase bei der Beugung an einer teildurchlässigen phasenschiebenden Halbebene mit den Kreisscharen $\sigma = \text{const}$, $\delta = \text{const}$. Der Vektor vom Punkt mit den Koordinaten σ und δ zum laufenden Punkt mit der Koordinate v auf der Spirale beschreibt nach Betrag und Richtung die komplexe Amplitude in der Beobachtungsebene

Die Mittelpunkte der Kreise $\sigma = \text{const}$ liegen auf der Abszissenachse an den Stellen $x_m = \coth \sigma$, und die Radien betragen $1/\operatorname{sh} \sigma$.

Aus dem Diagramm kann nicht nur die Amplitude, sondern auch die Phasenbeziehungen richtig abgelesen werden: Die Phasendifferenz zwischen zwei Punkten v_1 und v_2 der Registrierebene beträgt

$$\Delta\varphi = \operatorname{arctg} \frac{s(v_1) - y(\sigma, \delta)}{c(v_1) - x(\sigma, \delta)} - \operatorname{arctg} \frac{s(v_2) - y(\sigma, \delta)}{c(v_2) - x(\sigma, \delta)}, \quad (10)$$

ist also gleich dem Winkel zwischen den beiden vom Punkt x, y ausgehenden Fahrstrahlen zu den Punkten v_1 und v_2 der Cornu-Spirale.

Aus dem Physikalischen Institut der Tschechoslowakischen Akademie
der Wissenschaften, Prag

Der Einfluß eines elektrischen Feldes auf die Absorptionskante von ZnS

Von

S. DAMAŠKOVÁ und K. PÁTEK

Mit 3 Figuren im Text

(Eingegangen am 12. Juni 1961)

In the electric field as has been shown theoretically by FRANZ and KELDYSH¹ there is in crystals an absorption edge shift towards longer wave-lengths. This effect has been studied and verified on CdS by BÖER and co-workers² and has led to a more profound understanding of many problems of CdS single crystals conductivity. This paper is a first report on the absorption edge shift of ZnS single crystals in the electric field.

Reine und aktivierte Einkristalle von ZnS wurden mit Elektroden aus Silberpaste versehen (Elektrodenabstand etwa 1,5 mm) und an einen Generator von rechteckigen Impulsen (Länge der Impulse 0,1 bis 10 sec, Amplitude 0 bis 2000 V) angeschlossen. Mit Hilfe eines Monochromators (Dispersion 60 Å/mm), mit einem photoelektrischen Vervielfacher als Indikator und einer stabilisierten Wasserstofflampe als Lichtquelle, wurde die spektrale Transmissionskurve mit und ohne elektrischem Feld untersucht; für eine erwählte Wellenlänge wurde dann auch die zeitliche Veränderung der Transmission nach dem Einschalten und Ausschalten des elektrischen Feldes verfolgt. Die Messungen wurden bei Zimmertemperatur und -70°C durchgeführt.

Die Ergebnisse dieser Messungen sind im folgenden zusammengefaßt:

1. Ein elektrisches Feld von der Größenordnung 10^4 V/cm senkrecht zur c -Achse des Kristalles verursacht eine Verschiebung der Absorptionskante λ um 2 bis 20 Å (s. Fig. 1). Die Wirkung eines Feldes parallel zur c -Achse konnte nicht nachgewiesen werden.

2. Gleichzeitig mit der Kantenverschiebung beobachtet man auch eine Vergrößerung der Absorption im langwelligen Ausläufer der Kante.

¹ FRANZ, W.: Z. Naturforsch. **13a**, 484 (1958). — KELDYSCH, L.V.: Zh. exp. teor. fiz. **34**, 1138 (1958).

² BÖER, K.W., H. J. HÄNSCH u. U. KÜMMEL: Z. Physik **155**, 170 (1959). — BÖER, K.W.: Z. Physik **155**, 184 (1959).

3. Das Vorzeichen der Verschiebung hängt nicht von der Polarität des Feldes ab (es ist immer positiv, d.h. in der Richtung gegen längere Wellenlängen); für Gleichspannung und Wechselspannung ist die Größe der Verschiebung ungefähr gleich.

4. Typische Werte der Zeitkonstanten des Anlaufes und des Abklingens des Effektes (s. Fig. 2) sind $\tau_z = 0,8$ sec, $\tau_v = 0,4$ sec an einem Kristall mit einer Leitfähigkeit von $10^{11} \Omega$.

5. Die Spannungsabhängigkeit der Verschiebung ist superlinear (s. Fig. 3).

6. Bei Abkühlung auf -70°C bleibt der Effekt im wesentlichen unverändert.

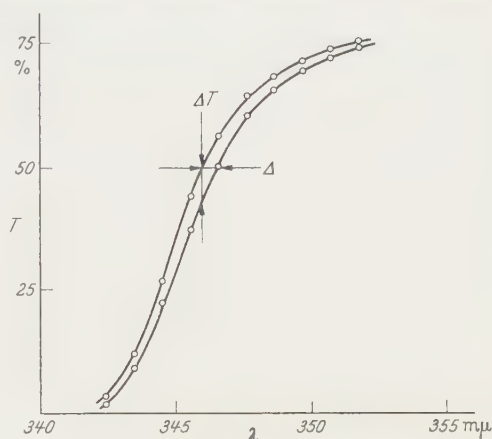


Fig. 1. Verschiebung der Transmissionskurve eines ZnS-Einkristalls im elektrischen Feld

Zum Ursprung des Effektes kann gezeigt werden, daß die Verschiebung nicht durch Kristallерwärmung verursacht ist: die Joulesche Wärme, die im Kristall bis zur Erreichung eines Gleichgewichts entwickelt

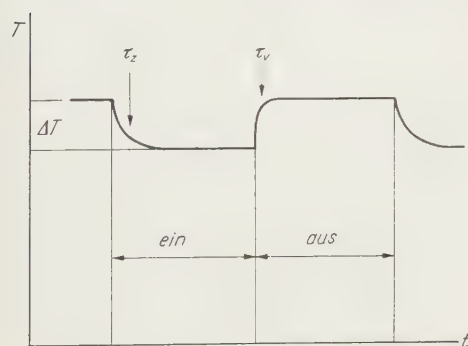


Fig. 2. Relaxation des Effektes beim Ein- und Ausschalten des elektrischen Feldes

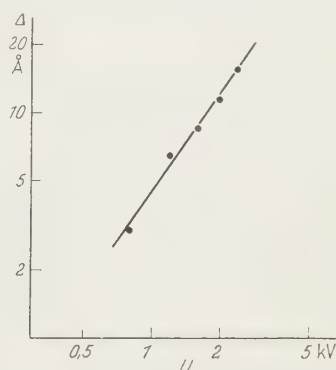


Fig. 3. Spannungsabhängigkeit der Kantenverschiebung

wird, genügt zur Erwärmung um einige Zehntel Grad, während für die beobachtete Verschiebung eine Erwärmung um mehrere Grad notwendig wäre³; die Zeitkonstanten des Anlaufes und des Abklingens sind verschieden; eine Steigerung der Belichtungsintensität auf das Zehnfache

³ PIPER, W. W., D. T. F. MARPLE and P. D. JOHNSON: Phys. Rev. **110**, 323 (1958).

(und daher auch eine Steigerung der Jouleschen Wärme) führt zu einer vernachlässigbaren Steigerung der Verschiebung; eine Temperaturerniedrigung läßt den Effekt unverändert usw.

Gegen die Erklärung durch einen inversen Piezoeffekt spricht die Unabhängigkeit von der Spannungspolarität. Gegen den Stark-Effekt spricht wieder die Größe des Effektes (vgl. z.B. ⁴).

Es bleibt also der Franz-Keldysche Effekt übrig, was auch in Übereinstimmung mit BÖER¹ ist. Ebenso wie bei CdS kann die Trägheit des Effektes durch die Trägheit elektronischer Prozesse beim Einstellen des Feldes interpretiert werden, da in ZnS-Einkristallen wie bekannt⁵ immer eine große Anzahl von Barrieren oder Randschichten vorausgesetzt werden kann.

⁴ GROSS, E.F.: *Uspechi fiz. nauk* **63**, 575 (1957).

⁵ MERZ, W.: *Helv. phys. Acta* **31**, 6 (1958). — THORNTON, W.A.: *J. Electrochem. Soc.* (im Druck). — TAUC, J.: *J. Phys. Chem. Solids* **11**, 345 (1959).

Institut für Kristallphysik der Deutschen Akademie der Wissenschaften zu Berlin

Zur Absorption der belichteten Silberhalogenidkristalle mit Chalkogenionenzusätzen

Von

A. SCHOLZ und O. STASIW

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 16. Juni 1961)

Das Verhalten der Absorptionsbanden, die infolge Bestrahlung dotierter Silberhalogenide in Abhängigkeit von der Temperatur entstehen, wird durch ein von uns schon früher angenommenes Modell qualitativ begründet. Es wird gezeigt, daß sowohl die Lage als auch die Stabilität der einzelnen Banden mit charakteristischem Verhalten verständlich gemacht werden können.

1. Einleitung

Das Verhalten von Silberhalogenidkristallen mit atomdispers eingebauten zweiwertigen Sauerstoff-, Selen-, Schwefel- und Tellurionen nach der Bestrahlung wurde eingehend in früheren Arbeiten beschrieben¹. Im Bereich tiefer Temperaturen von 20° bis etwa 170° K erzeugt eine Bestrahlung neue Absorptionsbanden, die für jede Zusammensetzung der Substanzen und Bestrahlungstemperatur bei charakteristischen Wellenlängen liegen.

Diese Absorptionsbanden wurden neuen Störstellenzentren zugeordnet, die aus den vor der Bestrahlung vorhandenen Fehlstellen durch Anlagerung von Elektronen bzw. Elektronen und Ionen als photochemische Reaktionsprodukte entstehen. Die Stabilität der photochemisch erzeugten Absorptionszentren ist unterschiedlich. Relativ einwandfrei konnten sowohl experimentell als auch theoretisch die Banden solcher Zentren erfaßt werden, welche nach dem Einfangen von Elektronen zusätzlich durch heranwandernde Ionen stabilisiert werden.

Die Existenz von Banden, die durch reine Elektronenlagerung entstehen, wurde zwar als zwangsläufige Bedingung angenommen; sie ließen sich jedoch bis zu den genaueren Untersuchungen von I. KUNZE experimentell (mit Ausnahme der Messungen von E. JELTSCH, deren Deutung fraglich war) nicht einwandfrei nachweisen. Es wird nunmehr versucht, die Bildung der einzelnen photochemischen Reaktionsprodukte (und vor allem die durch Elektronenanlagerung entstehenden) in Abhängigkeit

¹ Zusammenfassende Darstellung in O. STASIW: Elektronen- und Ionenprozesse in Ionenkristallen. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1959.

von Temperatur und Zusammensetzung durch ein schon in früheren Arbeiten angenommenes Modell (unter Berücksichtigung sämtlicher experimentellen Ergebnisse) mittels einer stark vereinfachten qualitativen Betrachtung theoretisch zu diskutieren und zu begründen.

2. Zusammenstellung der wichtigsten experimentellen Ergebnisse

Zum besseren Verständnis werden zunächst die wichtigsten Meßergebnisse an typischen Beispielen nochmals gebracht. Schon vor längerer Zeit konnte gezeigt werden, daß in einem $\text{AgBr} + \text{Ag}_2\text{S}$ -Misch-

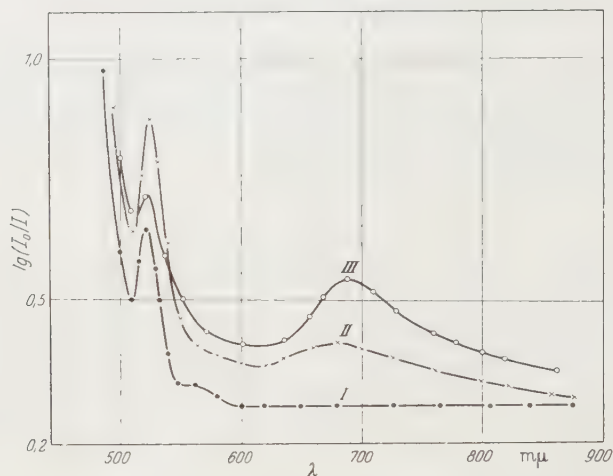


Fig. 1. Absorptionsspektren von $\text{AgCl} + \text{Ag}_2\text{Se}$ -Kristallen, Kurve I: vor der Bestrahlung; Kurve II: nach 15 min Bestrahlung bei 20° K mit Röntgenlicht; Kurve III: nach 5 min Bestrahlung bei etwa 90° K (gemessen bei 20° K)

kristall durch Bestrahlung bei etwa 90° K eine schwache Absorption bei 560 $\text{m}\mu$ entsteht, deren thermische Stabilität bei dieser Temperatur außerordentlich klein ist. Im allgemeinen können in einem $\text{AgBr} + \text{Ag}_2\text{S}$ -Mischkristall bei 90° K keine stabilen photochemischen Reaktionsprodukte erzeugt werden.

Später wurden in einer kurzen Notiz² experimentelle Untersuchungen mitgeteilt, deren Ergebnisse damals nicht gedeutet wurden. Sie sind in der Fig. 1 nochmals wiedergegeben: Ein mit Ag_2Se sensibilisierter AgCl -Kristall zeigt nach der Bestrahlung mit Röntgenlicht bei 20° K eine bei 525 $\text{m}\mu$ liegende Bande. Daneben entsteht relativ schwach die schon früher von CH. VOLKE gemessene Bande bei 680 $\text{m}\mu$. Abweichendes Verhalten ergibt eine Bestrahlung bei 90° K. Es erfolgt ein starker Aufbau

² JELTSCH, E.: Naturwissenschaften 45, 487 (1958).

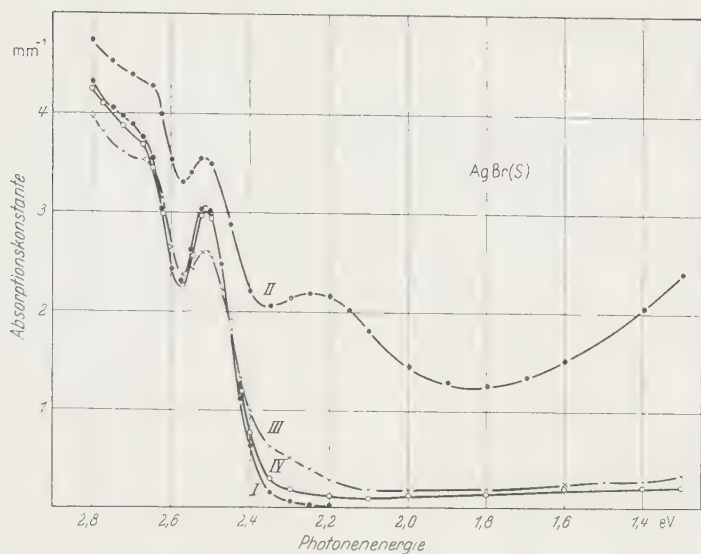


Fig. 2. Optisches Bleichen eines AgBr(S)-Kristalls bei 90° K. Absorption gemessen bei 90° K; Kurve I: nach Abschrecken; Kurve II: nach Bestrahlung bei 110° K mit 490 m μ , 45 min; Kurve III: nach anschließender Bestrahlung bei 90° K mit $\lambda > 650$ m μ , 120 min; Kurve IV: nach anschließendem kurzzeitigem Erwärmen auf Zimmertemperatur (2 min)

der stabilen Bande bei 680 m μ , während die Bande bei 525 m μ stark abnimmt. Dasselbe Verhalten zeigt ein mit Ag₂Se dotierter AgBr-Kristall: Bei 20° K entsteht eine bei 570 m μ liegende Absorption, während bei höherer Temperatur nur die schon früher nach einer Violettbelichtung gemessene Hauptbande bei 820 m μ gebildet wird. Daneben entsteht noch eine breite, kurzwelligere Absorption. In letzter Zeit konnte I. KUNZE³ zeigen (Fig. 2 und 3), daß bei dem Ausbleichen der

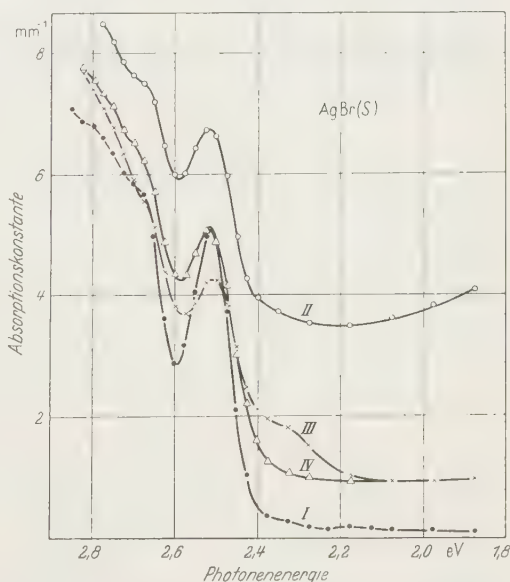


Fig. 3. Optisches Bleichen eines AgBr(S)-Kristalls bei 100° K. Absorption gemessen bei 20° K. Kurve I: nach Abschrecken; Kurve II: nach Bestrahlung bei 140° K mit 490 m μ , 10 min; Kurve III: nach Bestrahlung bei 120° K (2 Std) und bei 100° K (1 Std) mit $\lambda > 650$ m μ ; Kurve IV: nach Erwärmen auf 160° K

³ KUNZE, I.: Ann. Physik, im Druck befindlich.

photochemischen Reaktionsprodukte (die durch Bestrahlung bei etwa 140° K gebildet wurden) in einem $\text{AgBr} + \text{Ag}_2\text{S}$ -Kristall mit Licht der Wellenlänge $\lambda > 650\text{ m}\mu$ bei der Temperatur des flüssigen Wasserstoffs oder der flüssigen Luft eine Absorption bei $540\text{ m}\mu$ verbleibt. Diese Bande ist instabil und verschwindet vollständig nach dem Hochheizen auf die Temperatur von 160° K . In den meisten Fällen wird bei dem thermischen oder optischen Abbau der photochemischen Absorptionszentren die ursprüngliche vor der Bestrahlung vorhandene Absorption wieder erzeugt. Die von I. KUNZE in Ag_2S -haltigen AgBr -Mischkristallen gemessene Bande besitzt demnach die gleichen Eigenschaften wie die von E. JELTSCH gemessene Absorption bei $525\text{ m}\mu$ im $\text{AgCl} + \text{Ag}_2\text{Se}$ und die Absorption bei $570\text{ m}\mu$ im $\text{AgBr} + \text{Ag}_2\text{Se}$. Besonders auffallend ist, daß diese sämtlichen Banden, die im Temperaturbereich zwischen 20° K bis 110° K erzeugt wurden, stark instabil sind und schon bei der Temperatur der flüssigen Luft thermisch abgebaut werden können, obwohl sie kurzweiliger als die Hauptbanden (z. B. $750\text{ m}\mu$ im $\text{AgCl} + \text{Ag}_2\text{S}$ und $950\text{ m}\mu$ im $\text{AgBr} + \text{Ag}_2\text{S}$) liegen.

3. Zum Modell der photochemischen Reaktionsprodukte

In einem Ag_2S -haltigen AgCl - oder AgBr -Mischkristall werden entsprechend unseren früheren Untersuchungen die Hauptbanden bei 750 oder $950\text{ m}\mu$ durch Anlagerung von Elektronen und Silberionen auf Zwischengitterplatz (Ag_0^+) an einen $[\text{S}'_G\text{Cl}_\square]$ - oder $[\text{S}'_G\text{Br}_\square]$ -Komplex gebildet. Dadurch entstehen die (sogar noch bei Zimmertemperatur) stabilen Reaktionsprodukte $\text{Ag}_0^+[\text{S}'_G\text{Cl}_\square]$ bzw. $\text{Ag}_0^+[\text{S}'_G\text{Br}_\square]$. An der prinzipiellen Richtigkeit dieser Vorstellung bestehen kaum noch Zweifel. Während ein solches Modell bisher lediglich aus den optischen Messungen indirekt erschlossen wurde, ist es in der letzten Zeit gelungen, mittels Verlustwinkelmessungen ein ähnliches Zentrum unmittelbar nachzuweisen⁴. In einem $\text{AgBr} + \text{CdS} + \text{Ag}_2\text{S}$ -Mischkristall sind nämlich neben $[\text{Ag}_0^+\text{S}'_G]$ noch $[\text{Cd}_G^+\text{S}'_G]$ -Assoziate vorhanden. Durch Anlagerung von Ag_0^+ -Ionen und Elektronen an $[\text{Cd}_G^+\text{S}'_G]$ -Komplexe während der Bestrahlung entstehen $\text{Ag}_0^+[\text{Cd}_G^+\text{S}'_G]$ -Zentren, die sich bei Verlustwinkelmessungen unmittelbar bemerkbar machen. Bei unserem optischen Modell wird lediglich in einem $\text{Ag}_0^+[\text{Cd}_G^+\text{S}'_G]$ -Komplex das Cd_G^+ -Ion durch eine Br_\square^- ersetzt. Andere, insbesondere von MITCHELL vorgeschlagene photochemische Reaktionsmechanismen besitzen durch diesen Befund nicht den gleichen Grad der Wahrscheinlichkeit.

Die Lage der Absorptionsbanden von Zentren, die durch Anlagerung nur von Elektronen entstehen, welche also bei fehlender oder kleiner

⁴ STASIW, M.: Z. Naturforsch. **16a**, 529 (1961).

Ionenbewegung (d.h. bei tiefster Temperatur) gebildet werden, wurde nicht diskutiert. In einem einfachen Modell würde man zunächst diese Banden langwelliger als die der durch Ag_0^+ -Ionen stabilisierten Zentren erwarten, falls man die gemessene Absorption dem Übergang des Elektrons vom Grundzustand ins Leitungsband zuordnet, wie das in den letzten Arbeiten geschehen ist. Anders liegen die Verhältnisse, wenn man neben dem Grundzustand auch angeregte Zustände unterhalb des Leitungsbandes annimmt. Durch vereinfachte Berechnung (die nur orientierende Aussagen machen kann) des Verhaltens der Terme eines Elektrons in der Halogenlücke im elektrischen Feld einer positiven oder negativen Überschußladung (z. B. $[\text{S}'_G\text{Br}_\square]$) läßt sich folgendes zeigen: Bei Berücksichtigung der Gitterschwingungen kann der Übergang vom Grund- zum angeregten Zustand in einem $[\text{S}'_G\text{Br}_\square]$ -Komplex durchaus mehr Energie erfordern als im $\text{Ag}_0^+[\text{S}'_G\text{Br}_\square]$, was aber eine kurzwelligere Absorption bedeutet. Dagegen ist der Abstand vom Grundzustand zum Leitungsband in einem $[\text{S}'_G\text{Br}_\square]$ infolge der Coulomb-Kräfte, die im Schwerpunkt der Halogenlücke wirksam sind, bedeutend geringer als in einem $\text{Ag}_0^+[\text{S}'_G\text{Br}_\square]$ -Komplex.

Die Messungen von I. KUNZE und E. JELTSCH zeigten, daß bei tiefen Temperaturen durch Dotierung bedingte instabile Banden entstehen. Auch in sauerstoffdotierten AgBr-Kristallen erhält man nach Messungen von G. SCHEIDLER⁵ eine instabile Absorption bei 640 m μ durch Bestrahlung bei 20° K, also im Temperaturbereich, bei dem nur Elektronenprozesse zur Bildung der photochemischen Reaktionsprodukte beitragen können.

Läßt man in Silberhalogeniden mit Chalkogenionenzusätzen die Existenz angeregter Zustände zu, dann läßt sich der Aufbau der von STASIW, JELTSCH, KUNZE und SCHEIDLER (an Sauerstoff) gemessenen instabilen Banden als Anlagerung von Elektronen an Halogenlücken, z. B. im $[\text{S}'_G\text{Br}_\square]$ -Komplex, verstehen. Diese photochemischen Reaktionsprodukte lassen sich, wie die experimentellen Ergebnisse zeigen, auch bei tiefsten Temperaturen erzeugen; ihre Absorption liegt kurzwelliger als die der schon früher gemessenen Hauptbanden.

4. Termverschiebung und Aufspaltung

Bei der theoretischen Abschätzung wird kein Wert darauf gelegt, die Lage der Spektren genau zu ermitteln. Schon bei der theoretischen Bestimmung der Terme von Farbzentren in Alkalihalogeniden ist man auf eine starke Vereinfachung angewiesen. Bedeutend komplizierter liegen die Verhältnisse bei den in Silberhalogeniden vorkommenden Farb-

⁵ SCHEIDLER, G.: Erscheint demnächst.

zentren, in deren Umgebung sich eine negative Überschußladung befindet. Der Einfluß der Ionenpolarisation in der Umgebung der asymmetrischen Störstelle und die Beteiligung der Gitterschwingungen während der Absorption, die sicher eine starke Verschiebung der Terme verursacht, sind einer genauen theoretischen Betrachtung schwer zugänglich. Es soll hier, wie schon kurz erwähnt, lediglich die Stabilität der einzelnen photochemischen Reaktionsprodukte und die relative Lage ihrer Terme zueinander erörtert werden. Die Zustände des Elektrons in einer Halogenlücke werden in grober Näherung durch Wasserstoffterme ersetzt. Es wird nach der Verschiebung und Aufspaltung des Grund- und des angeregten Zustandes gefragt, wenn sich in der unmittelbaren Umgebung des Farbzentrons eine negative Störladung befindet. Diese Verschiebung und Aufspaltung wurden aus der Störungsrechnung in erster Näherung gewonnen. Die Aufspaltung der einzelnen Terme des angeregten Zustandes ist natürlich infolge der Überlagerung von Gitterschwingungen nicht beobachtbar. Lediglich der Schwerpunkt (s. Fig. 4), der aus dem Mittelwert der Aufspaltungsterme resultiert, wird mit dem Maximum der Absorptionsbande in Zusammenhang gebracht. Allerdings ist für die Wellenlänge der Absorptionsbande nicht allein die absolute Lage der Aufspaltungsterme maßgebend. Man muß noch die Tatsache benutzen, daß bei hinreichend hohen Feldern die Absorption im roten Bereich eine starke Störung erfährt, so daß sich praktisch nur kurzwellige Komponenten mit merklicher Intensität in der Absorption bemerkbar machen. Eine solche Störung der langwelligen Aufspaltungskomponenten in starken elektrischen Feldern wurden experimentell öfters beobachtet. Es ist aber durchaus möglich, daß neben der kurzwelligen Absorptionsbande (die von E. JELTSCH und I. KUNZE gemessen wurden) noch eine zu dem behandelten Zentrum gehörende langwelligere Absorption vorkommt, falls eine Störung der Terme im roten Bereich nicht vorhanden ist; diese konnte bisher nicht beobachtet werden, da sie von der Absorption anderer photochemischer Reaktionsprodukte überdeckt wird.

Mittels dieses stark vereinfachten Modells lassen sich im Prinzip die optischen Eigenschaften und die Stabilität der photochemischen Absorptionszentren erklären. Man kann zeigen, daß mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit die Absorption der stabilen Zentren, z. B. $\text{Ag}_0[\text{S}'_G\text{Br}_\square]$, zu einer Anregung des Elektrons in einen Term weit unter dem Leitungsband führt. Dagegen kann der Energieabstand der angeregten Terme eines $[\text{S}'_G\text{Br}_\square]$ -Komplexes zum Leitungsband praktisch vernachlässigt werden.

Entsprechende lichtelektrische Untersuchungen, die demnächst an solchen Fehlstellen durchgeführt werden, können zusätzlich einen Beitrag zur Klärung dieser Auffassung liefern.

5. Zur Beeinflussung der Energieeigenwerte eines Einelektronensystems durch eine bzw. zwei punktförmige Störladungen

a) Wirkung einer Störladung

Zur Abschätzung der Energieeigenwerte des Elektrons vom $[S_G'Br_\square]$ -Komplex werden folgende vereinfachende Voraussetzungen gemacht:

1. Das Elektron in der Halogenlücke wird in grober Näherung durch ein Elektron, das sich in einem kugelsymmetrischen Coulomb-Feld eines Atomkernes (ungestörtes Problem) befindet, ersetzt.

2. Das Chalkogenion mit einer negativen Überschußladung, das sich in unmittelbarer Nachbarschaft der Halogenlücke befindet, wird durch eine punktförmige Störladung $q = -e$ im Abstand R_0 vom Mittelpunkt der Lücke ersetzt. Durch diese Störladung $q = -e$ werden die Eigenwerte des Elektrons in der Halogenlücke verändert.

Der tiefste Eigenwert des ungestörten Problems ist

$$E_{\text{grund}} = E_g \left(\begin{matrix} n=1 \\ l=0 \\ m=0 \end{matrix} \right).$$

Der nächste Energieterm für $n=2, l=0, l=1$ lautet:

$$E_{\text{angeregt}} = E_a \left(\begin{matrix} n=2 \\ l=0 \\ m=0 \end{matrix} \right) = E_a \left(\begin{matrix} n=2 \\ l=1 \\ m=1 \end{matrix} \right) = E_a \left(\begin{matrix} n=2 \\ l=1 \\ m=0 \end{matrix} \right) = E_a \left(\begin{matrix} n=2 \\ l=1 \\ m=-1 \end{matrix} \right).$$

Der Energiewert E_a hat also vierfache Multiplizität. Der Abstand $E_a - E_g = \Delta E$ gibt die Absorption des ungestörten Problems (isolierte Halogenlücke) an.

Für die Störungsrechnung werden die Eigenfunktionen ψ_{nlm} des ungestörten Elektrons benutzt, welche durch Wasserstoffeigenfunktionen angenähert werden. Die Störungsrechnung für entartete Quantenzustände ergibt für die Aufspaltung und Verschiebung des angeregten Energietermes in erster Näherung eine Säkulargleichung vierter Ordnung. Wichtig für die Säkularmatrix sind die Matrixelemente

$$\langle \psi_{nlm} | V_{\text{Stö}} | \psi_{n'l'm'} \rangle,$$

wobei

$$V_{\text{Stö}} = \frac{q(-e)}{R}$$

ist. Ausführlich geschrieben lautet solch ein Matrixelement:

$$\begin{aligned} \langle \psi_{nlm} | V_{\text{Stö}} | \psi_{n'l'm'} \rangle &= \int_{r=0}^{\infty} \int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{\vartheta=0}^{\pi} [r^2 \cdot dr \cdot d\varphi \cdot \sin \vartheta \cdot d\vartheta] \times \\ &\times u_{n'l}^*(r) \cdot \Theta_l^m(\vartheta) \cdot \Phi_m^*(\varphi) \cdot V_{\text{Stö}} \cdot u_{n'l'}(r) \cdot \Theta_{l'}^{m'}(\vartheta) \cdot \Phi_{m'}(\varphi). \end{aligned}$$

Hierbei sind $[\Theta_{\nu'}^{m'}(\vartheta) \cdot \Phi_{m'}(q)]$ normierte Kugelfunktionen. Werden die Radialfunktionen $u_{nl}(r)$ durch Wasserstoffeigenfunktionen angenähert, dann hat man also:

$$u_{nl}(r) = \frac{1}{r} \cdot \sqrt{\frac{Z \cdot (n-l-1)! \cdot m_{el} \cdot e^2}{n^2 \cdot \hbar^2 \cdot [(n+l)!]^3}} \cdot e^{-\frac{1}{2}\varrho} \cdot \varrho^{l+1} \cdot L_{n+l}^{2l+1}(\varrho)$$

mit
$$\varrho = r \cdot \frac{2 \cdot Z \cdot m_{el} \cdot e^2}{n \cdot \hbar^2}.$$

L_k^j = Laguerresche Polynome.

Das von der Störladung auf den Aufpunkt ausgeübte Potential $V_{\text{Stör}} = \frac{q(-e)}{R}$ ist dabei nach Kugelfunktionen $P_s^0(\cos \omega)$ zu entwickeln:

$$\frac{1}{R} = \sum_{s=0}^{\infty} \frac{r^s}{R_0^s} P_s^0(\cos \omega).$$

Der Winkel ω ist nach dem Additionstheorem für Kugelfunktionen durch Winkelkoordinaten $\alpha, \beta, \vartheta, \varphi$ auszudrücken. α, β bedeuten die Winkel der Störladung in bezug auf die Koordinatenachsen.

Mit diesen Annahmen ergeben sich aus der Säkulargleichung folgende Energieeigenwerte für den angeregten Zustand ($W_\nu = E_a + \varepsilon_\nu$):

$$\begin{aligned} W_1 &= W_2 = E_a + \frac{e^2}{R_0} + \frac{e^2 \cdot A}{5 \cdot R_0^3}, \\ W_3 &= E_a + \frac{e^2}{R_0} + \frac{e^2 \cdot A}{5 \cdot R_0^3} - \left[\left(\frac{e^2 \cdot A}{5 \cdot R_0^3} \right)^2 + \frac{1}{3} \cdot \left(\frac{e^2 \cdot B}{R_0^2} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}, \\ W_4 &= E_a + \frac{e^2}{R_0} + \frac{e^2 \cdot A}{5 \cdot R_0^3} + \left[\left(\frac{e^2 \cdot A}{5 \cdot R_0^3} \right)^2 + \frac{1}{3} \cdot \left(\frac{e^2 \cdot B}{R_0^2} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}. \end{aligned}$$

Während für den Grundzustand gilt: $W_g = E_g + \frac{e^2}{R_0}$.

Die Integrale A und B haben für Wasserstoffeigenfunktionen die Gestalt:

$$\begin{aligned} A &= 30 \cdot \left(\frac{\hbar^2}{m_{el} \cdot e^2 \cdot Z} \right)^2, & B &= -3 \cdot \sqrt{3} \cdot \left(\frac{\hbar^2}{m_{el} \cdot e^2 \cdot Z} \right), \\ \frac{\hbar^2}{m_{el} \cdot e^2} &= 0,538 \cdot 10^{-8} \text{ cm}. \end{aligned}$$

Für die Energiedifferenzen $\Delta W_\nu = W_\nu - W_g$ ergeben sich folgende Werte:

$$\begin{aligned} \Delta W_1 &= \Delta W_2 = \Delta E - \frac{e^2 \cdot A}{5 \cdot R_0^3} \quad \text{mit} \quad \Delta E = E_a - E_g, \\ \Delta W_3 &= \Delta E + \frac{e^2 \cdot A}{5 \cdot R_0^3} - \left[\left(\frac{e^2 \cdot A}{5 \cdot R_0^3} \right)^2 + \frac{1}{3} \cdot \left(\frac{e^2 \cdot B}{R_0^2} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}, \\ \Delta W_4 &= \Delta E + \frac{e^2 \cdot A}{5 \cdot R_0^3} + \left[\left(\frac{e^2 \cdot A}{5 \cdot R_0^3} \right)^2 + \frac{1}{3} \cdot \left(\frac{e^2 \cdot B}{R_0^2} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}. \end{aligned}$$

Zahlenmäßige Abschätzungen dieser Größen sind für Wasserstoffeigenfunktionen ($Z=1$) aus Tabelle 1 zu ersehen.

Tabelle 1

R_0	$\frac{e^2 \cdot A}{5 \cdot R_0^3}$	$\frac{e^2 \cdot B}{R_0^3}$	$\left[\left(\frac{e^2 \cdot A}{5 \cdot R_0^3} \right)^2 + \frac{1}{3} \left(\frac{e^2 \cdot B}{R_0^3} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}$
$5 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$	0,19 eVolt	1,58 eVolt	0,93 eVolt
$3,5 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$	0,565 eVolt	3,22 eVolt	1,95 eVolt

Man erhält somit das in Fig. 4 dargestellte Termschema. Aus der Fig. 4 ist sofort folgendes zu entnehmen: $\Delta E_i > \Delta E_v$, während $\Delta E < \Delta W$ ist, wobei W den Schwerpunkt der in Abschnitt 4 definierten Energieterme darstellt.

In einem $[S'_G Br_\square]$ -Komplex ist die Absorption $\approx \Delta W$. In einem $Ag_0[S'_G Br_\square]$ -Aggregat ist infolge der Anlagerung des Ag_0 -Ions in unmittelbarer Nachbarschaft des S'_G -

Ions der Einfluß der negativen Störladung bedeutend kleiner, so daß die Absorption eines $Ag_0[S'_G Br_\square]$ angenähert ΔE wird.

Dagegen ist der Übergang des Elektrons vom Grundzustand in das Leitungsband für einen $[S'_G Br_\square]$ -Komplex $\approx \Delta E_v$, während er für $Ag_0[S'_G Br_\square]$ angehähert ΔE_i ist, wobei $\Delta E_i > \Delta E_v$ gilt.

Analytisch wird die Wirkung der beiden Störladungen, welche von den S'_G - und Ag_0 -Ionen herrühren, im folgenden Teil b) behandelt.

b) Einfluß von zwei Störladungen auf ein Einelektronensystem

Die Störungen der Energieterme hängen in einer komplizierten Weise ab vom Winkel, welchen die Radiusvektoren der beiden Störladungen miteinander einschließen. Diese Abhängigkeit vom Winkel kann man kaum in expliziter Form allgemein angeben. Deshalb müssen Spezialfälle betrachtet werden.

Genauer behandelt wurde folgendes Modell: Gegeben ist in einem kubischen Silberhalogenidgitter auf dem Gitterplatz $\left(0 \cdot \frac{d}{2}, 0 \cdot \frac{d}{2}, 0 \cdot \frac{d}{2}\right)$ eine Halogenlücke mit eingefangenem Elektron; auf dem Gitterplatz $\left(\frac{d}{2}, \frac{d}{2}, 0\right)$ befindet sich ein S'_G -Ion und auf dem Zwischengitterplatz

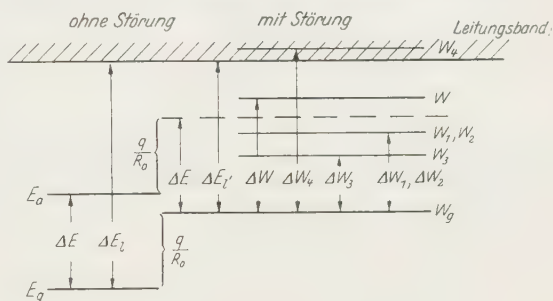


Fig. 4. Termschema

$\left(\frac{3}{2}d, \frac{d}{2}, \frac{d}{2}\right)$ ein Silberion Ag_0^+ (d = Gitterkonstante). Die mit einem Elektron gefüllte Halogenlücke wird angesehen als das Einelektronensystem mit kugelsymmetrischem Potential. Denn in grober Näherung wurde es für das ungestörte Elektron in der Halogenlücke als Coulomb-Potential angenommen. Die der Lücke benachbarten S'_G - und Ag_0^+ -Ionen fungieren als die beiden Störladungen q_S und q_A . Ihre Radiusvektoren bilden einen Winkel von $31,482^\circ$ miteinander*. Berechnet wurden in erster Näherung das Grundenergieniveau W_g und die angeregten Energieteile W_a . Die Beeinflussung der höheren angeregten Energieteile wurde wegen zu großen mathematischen Aufwands nicht behandelt. Der Grundzustand E_g (ungestörtes Problem) mit den Quantenzahlen $n=1, l=0, m=0$ ist einfach. Durch die Störladungen q_S und q_A erfolgt nur eine Verschiebung der Energie E_g um:

$$(W_g - E_g) = \frac{q_S(-e)}{R_S} + \frac{q_A(-e)}{R_A}.$$

Hierbei sind: R_S, R_A die Abstände des S'_G - bzw. Ag_0^+ -Ions von dem Mittelpunkt der Lücke. Es gilt hier $R_A = R_S \cdot \sqrt{\frac{11}{8}}$, $q_S = -e$, $q_A = +e$. Der angeregte Energieterm hat eine vierfache Multiplizität, denn es gilt:

$$E_a \begin{pmatrix} n=2 \\ l=0 \\ m=0 \end{pmatrix} = E_a \begin{pmatrix} n=2 \\ l=1 \\ m=1 \end{pmatrix} = E_a \begin{pmatrix} n=2 \\ l=1 \\ m=0 \end{pmatrix} = E_a \begin{pmatrix} n=2 \\ l=1 \\ m=-1 \end{pmatrix}.$$

Infolge der Störladungen werden die Terme E_a zunächst gleichmäßig verschoben um $\frac{q_S(-e)}{R_S} + \frac{q_A(-e)}{R_A}$ und dann noch aufgespalten in vier einfache Terme $W_{a_1}, W_{a_2}, W_{a_3}, W_{a_4}$. Der Einfluß eines kubischen Kristallfeldes braucht nicht beachtet zu werden: denn alle Energieeigenwerte $W_g, W_{a_1}, W_{a_2}, W_{a_3}, W_{a_4}$ werden hierdurch nur gleichmäßig verschoben (keine Aufspaltung). In erster Näherung erhält man für die Wirkung der beiden Störladungen q_S und q_A auf den angeregten Term E_a folgende Säkulargleichung

$$x^4 - x^2 \cdot [7,8254 \cdot P^2 + 0,0962 \cdot Q^2] - x \cdot [5,5060 \cdot P^3 + 0,1962 \cdot P \cdot Q^2] - 0,09341 \cdot P^2 \cdot Q^2 = 0.$$

Die unbekannte x dieser Gleichung hat die Bedeutung:

$$x = \varepsilon - \left[\frac{q_S(-e)}{R_S} + \frac{q_A(-e)}{R_A} \right].$$

Hierbei ist ε die zu berechnende Störenergie. Also gilt ($W_a = E_a + \varepsilon$):

$$W_a = E_a + \left[\frac{q_S(-e)}{R_S} + \frac{q_A(-e)}{R_A} \right] + \varepsilon.$$

* Diese Konfiguration entspricht der Gleichgewichtslage eines $\text{Ag}_0^+[\text{S}'_G\text{Br}_\square]$ Komplexes im Silberhalogenidgitter.

Weiterhin haben die vorgegebenen Größen P und Q folgende Form:

$$P = \frac{1}{10} \cdot \frac{q_S(-e)}{R_S^3} \cdot A = \frac{1}{10} \cdot \frac{e^2 \cdot A}{R_S^3}, \quad Q = \frac{q_S(-e)}{R_S^2} \cdot B = \frac{B \cdot e^2}{R_S^2}.$$

Wenn man mit wasserstoffähnlichen radialen Eigenfunktionen rechnet, haben die Integrale A und B die Gestalt:

$$A = \int_0^{\infty} u_{2p}(r) \cdot r^4 \cdot u_{2p}(r) \cdot dr, \quad B = \int_0^{\infty} u_{2s}(r) \cdot r^3 \cdot u_{2p}(r) \cdot dr.$$

Es ist stets $A > 0$ also auch $P > 0$.

Läßt man A und B unbestimmt, so kann man dennoch die Tendenz der Aufspaltungen in einem größeren Geltungsbereich des Modells studieren. Hierzu wurde die Säkulargleichung für verschiedene Werte des Verhältnisses $P/|Q|$ gelöst. Die Resultate sind aus der Tabelle 2 ersichtlich.

Tabelle 2

Verhältnis $\frac{P}{ Q }$		Wurzeln x der Säkulargleichung			
1,	d. h. $ Q = P$	$x_1 = 3,12 P$	$x_2 = -0,016 P$	$x_3 = -0,76 P$	$x_4 = -2,34 P$
$\frac{1}{5}$,	d. h. $ Q = 5 P$	$x_1 = 3,64 P$	$x_2 = -0,34 P$	$x_3 = -0,74 P$	$x_4 = -2,55 P$
$\frac{1}{10}$,	d. h. $ Q = 10 P$	$x_1 = 4,8 P$	$x_2 = -0,75 P$	$x_3 = -0,80 P$	$x_4 = -3,25 P$
$\frac{1}{100}$,	d. h. $ Q = 100 P$	$x_1 = 32 P$	$x_2 = -0,76 P$	$x_3 = -1,3 P$	$x_4 = -30,1 P$

Als Unterschiede zur Wirkung von einer Störladung ergeben sich:

1. Es folgt hier eine Aufspaltung von E_a in vier Eigenwerte, dagegen bei einer Störladung nur in drei Linien. Dies ist eine Folge der verringerten räumlichen Symmetrie.

2. Der Betrag der Aufspaltung zwischen den beiden am entferntesten voneinander befindlichen Energiewerten W_{a_1} und W_{a_4} ist bei zwei Störladungen q_S und q_A bedeutend geringer als bei einer einzigen Ladung q_S für konstantes Verhältnis $P/|Q|$.

c) Kritische Schlußbemerkung

Dieses einfache Bild berücksichtigt nicht diejenigen Effekte, die sich aus der Störungsrechnung zweiter Näherung ergeben. Infolge des starken elektrischen Feldes der Überschußladung sind sie jedoch sicher nicht vernachlässigbar klein. Die in der Abschätzung vernachlässigte Beeinflussung der Polarisation der Umgebung und der Störstelle selbst verkleinert das Feld der Überschußladung am Ort der Halogenlücke und damit auch die in der Tabelle 1 angegebenen Zahlenwerte. Der Einfluß der Gitterschwingungen dagegen verschiebt die Absorption nach dem violetten Bereich und verschmiert das in der Fig. 4 aufgezeichnete Aufspaltungsbild. Die Verschiebung nach dem Violetten durch Gitterschwingungen hat wahrscheinlich für beide Zentren $[S_G^+ Br_{\square}]$ und $Ag_{\square}^+[S_G^+ Br_{\square}]$ infolge verschiedener Kopplung an das Kristallgitter nicht den gleichen Betrag.

Laboratorium für Technische Physik der Technischen Hochschule München

Untersuchung von Konversionselektronen beim Mößbauer-Effekt am Wolfram-182 mit einem magnetischen Spektrometer

Von

EGBERT KANKELEIT

Mit 6 Figuren im Text

(Eingegangen am 24. Mai 1961)

Die rückstoßfreie Resonanzabsorption von γ -Quanten (Mößbauer-Effekt) wird in dieser Arbeit durch Messung der beim Zerfall der angeregten Absorberkerne auftretenden Konversionselektronen in einem β -Spektrometer nachgewiesen. Mit dieser Methode wurde der 100 keV-Übergang in W^{182} mit metallischem Tantal als Quelle und angereichertem Wolframmetall als Resonanzabsorber untersucht. Die L -Konversionslinie der 100 keV-Strahlung überragte bei 22° K den Untergrund um 44%. Aus Doppler-Effektmessungen ergab sich die Halbwertszeit des ersten angeregten Zustands von W^{182} zu $T_{1/2} = (1,34 \pm 0,13) \cdot 10^{-9}$ sec. Aus der Temperaturabhängigkeit des Effekts wurde die Debye-Temperatur von Tantal zu $280 \pm 10^\circ$ K bestimmt. Die Meßergebnisse zeigen gute Übereinstimmung mit andersartigen Messungen, widersprechen aber früheren Mößbauer-Transmissionsexperimenten.

Einleitung

Wird bei einem elektromagnetischen Übergang im Kern die Energie E_0 frei, so erhält das emittierte γ -Quant die Energie $E_0 - E_R$, wenn sich der Kern vor der Emission im freien und ruhenden Zustand befand. Die Rückstoßenergie E_R des Kernes geht dem Quant im Laborsystem verloren. Aus dem Impulssatz folgt: $E_R = E_0^2 / 2Mc^2$. Für ein freies, ruhendes Atom ist für M die Masse des Atoms einzusetzen. Befindet sich das emittierende Atom in einem freien und ruhenden Kristall, so wird die Rückstoßenergie im allgemeinen mit großer Wahrscheinlichkeit durch Ein- und Mehrphononenprozesse vom Kristall aufgenommen. MÖSSBAUER¹ hat zuerst im Falle des γ -Rückstoßes gezeigt, daß es eine durch den Debye-Waller-Faktor ausgedrückte Wahrscheinlichkeit dafür gibt, daß keine Phononenübergänge stattfinden. Dann ist in obigem Impulssatz die Masse des gesamten Kristalls einzusetzen, die im allgemeinen so groß ist, daß die Rückstoßenergie gegenüber der Energieunschärfe des γ -Quants zu vernachlässigen ist.

Der Debye-Waller-Faktor lautet²

$$f = e^{-2W} = e^{-\frac{1}{3} \frac{\overline{r^2}}{\lambda^2}} = e^{-\frac{1}{3} \frac{E_0^2}{h^2 c^2} \overline{r^2}}.$$

¹ MÖSSBAUER, R.L.: Z. Physik **151**, 124 (1958).

² BOUMAN, J.: Handbuch der Physik, Bd. 32, S. 214. 1957.

Hierbei ist $\overline{r^2}$ die mittlere quadratische Auslenkung des Atoms aus der Ruhelage. Es ist

$$\overline{r^2} = \frac{3}{M} \int_0^\infty \frac{\varepsilon(\omega, T) Z(\omega)}{\omega^2} d\omega; \quad \varepsilon(\omega, T) = \hbar \omega \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{e^{\frac{\hbar \omega}{kT}} - 1} \right).$$

T ist die Temperatur des Kristalls, M die Masse des emittierenden Atoms. Unter der Annahme eines Debye-Spektrums

$$Z(\omega) = \begin{cases} 3\omega^2/\omega_g - \omega_g^3 & \omega \leq \omega_g = \frac{k\Theta}{\hbar} \\ 0 & \omega > \omega_g \end{cases}$$

wird

$$\overline{r^2} = \frac{9\hbar^2}{Mk\Theta} \left[\frac{1}{4} + \left(\frac{T}{\Theta} \right)^2 \int_0^{T/\Theta} \frac{t}{e^t - 1} dt \right].$$

Θ ist die Debye-Temperatur des Kristalls. Für $T \ll \Theta$ wird das Integral $\pi^2/6$.

Die Emissionswahrscheinlichkeit eines Kernes, der sich nicht in Wechselwirkung mit seiner Umgebung befindet, ist bei Vernachlässigung einer kleinen relativistischen Verschiebung für die rückstoßfreien Übergänge

$$W(E) = \frac{1}{\pi} \frac{\Gamma/2}{(E - E_0)^2 + (\Gamma/2)^2} \cdot f; \quad \int_0^\infty W(E) dE = f.$$

$\Gamma = \hbar/\tau \cdot \tau$ ist die Lebensdauer des angeregten Zustands. Analog verhält sich der Absorptionsquerschnitt $\sigma(E)$. Die Wahrscheinlichkeit der rückstoßfreien Absorption werde mit dem Debye-Waller-Faktor f' bezeichnet, der von der Temperatur T' und der Debye-Temperatur Θ' des Absorbers abhängig ist.

Es ist

$$\sigma(E) = \frac{(\Gamma/2)^2}{(E - E_0)^2 + (\Gamma/2)^2} \sigma_0 f'$$

mit

$$\sigma_0 = \frac{2I_a + 1}{2I_g + 1} \frac{2\pi \hbar^2 c^2}{E_0^2} \frac{1}{1 + \alpha}.$$

Hierbei ist I_a der Spin des angeregten Zustands, I_g der Spin des Grundzustands, α der totale Konversionskoeffizient.

Bei einem idealisierten Transmissionsexperiment, bei dem nur die Strahlung des betrachteten Überganges in den Grundzustand in das Nachweisgerät gelangt, beträgt der Transmissionseffekt, definiert als das Verhältnis der Differenz der Zählraten mit und ohne Resonanzabsorption

zur Zählrate ohne Resonanzabsorption³

$$\eta_T = f - \int_0^{\infty} W(E) e^{-\sigma(E)N} dE = f \left(1 - e^{-f' \frac{\sigma_0}{2} N} J_0 \left(i f' \frac{\sigma_0}{2} N \right) \right).$$

Es ist N die Zahl der resonanzfähigen Absorberkerne pro cm^2 , J_0 Besselfunktion nullter Ordnung. Für einen „dünnen“ Absorber, bei dem $f' \frac{\sigma_0}{2} N \ll 1$ ist, gilt näherungsweise $\eta_T \cong f f' \frac{\sigma_0}{2} N$. In diesem Fall kann man einen mittleren Absorptionsquerschnitt definieren $\sigma_R = f f' \frac{\sigma_0}{2}$, so daß $\eta_T \cong \sigma_R N$ wird. In einem sehr dicken oder schwarzen Absorber, $f' \frac{\sigma_0}{2} N \gg 1$, werden alle rückstoßfrei emittierten Quanten eingefangen. Man hat dann den maximal erzielbaren Effekt $\eta_T = f$.

Für die Messung ist es wichtig, den Resonanzeffekt ein- und auszuschalten. Man kann hierzu durch Erhöhung der Temperatur von Quelle bzw. Absorber f bzw. f' gegen Null gehen lassen³ oder die Emissions- und Absorptionskurven durch Doppler-Verschiebung⁴ oder Zeemann-Aufspaltung⁵ gegeneinander verschieben. Wird die Doppler-Verschiebung durch eine Relativbewegung der Geschwindigkeit v erzeugt, so ist in obiges Integral für $W(E)$ oder $\sigma(E)$ die Energie E zu ersetzen durch $E + \frac{v}{c} E$. Bei dünnem Absorber erhält man als Geschwindigkeitsspektrum des Effekts

$$\eta_T(v) = f f' \frac{\sigma_0}{2} N \frac{\Gamma^2}{\left(\frac{v}{c} E_0 \right)^2 + \Gamma^2},$$

also wieder eine Lorentz-Kurve wie $W(E)$ und $\sigma(E)$, aber mit der doppelten Halbwertsbreite 2Γ .

Bei dickem Absorber wird entsprechend der Exponentialfunktion der mittlere Teil der Funktion $W(E)$ relativ stärker geschwächt als die Flanken. Man erhält daher als Geschwindigkeitsspektrum eine gegenüber der Lorentz-Kurve abgeflachte Kurve, bei der die Halbwertsbreite mit wachsender Dicke zunimmt³. Zur Bestimmung von Γ ist deshalb im allgemeinen die Kenntnis von f und $f' \frac{\sigma_0}{2} N$ erforderlich.

Aus meßtechnischen Gründen ist, selbst auf Kosten der Zählrate, ein möglichst großer Effekt wünschenswert. Hierzu bietet sich die Möglichkeit an, die Resonanzabsorption durch die Strahlung nachzuweisen, die beim Zerfall des angeregten Absorberkernes ausgesandt wird. Es kann entweder das reemittierte γ -Quant, ein Konversionselektron

³ MÖSSBAUER, R.L.: Z. Physik **159**, 33 (1960).

⁴ MÖSSBAUER, R.L.: Naturwissenschaften **45**, 538 (1958). — Z. Naturforsch. **14a**, 211 (1959).

⁵ CRAIG, P.P., D.E. NAGL and D.R.F. COCHRAN: Phys. Rev. L. **4**, 561 (1960).

oder das bei der Konversion entstehende Röntgenquant registriert werden. Konkurrierend zu dieser „Resonanzstrahlung“ wird vom Detektor eine nichtresonante Streustrahlung erfaßt. Diese wird hervorgerufen durch Rayleigh-, Compton- bzw. Photoprozesse der Anregungsstrahlung und der γ - und Röntgenstrahlung, die in der Quelle neben der Anregungsstrahlung erzeugt wird.

Der Effekt ist bei einem „Resonanzexperiment“ mit dünnem Absorber⁶ gegeben durch

$$\eta_R = \frac{\sigma_R}{\sigma_s + \sum_i \sigma_{s,i} p_i} \frac{\alpha_r}{S(\vartheta)} \frac{R(\vartheta)}{S(\vartheta)} \cdot H.$$

Es ist σ_s der Querschnitt bezüglich der Anregungsstrahlung mit der Emission einer Streustrahlung, die vom Detektor nachgewiesen wird, $\sigma_{s,i}$ sind die entsprechenden Querschnitte bezüglich der anderen Strahlungen, die relativ zur Anregungsstrahlung mit der Wahrscheinlichkeit p_i den Absorber treffen. Mit $R(\vartheta)$ und $S(\vartheta)$ soll die Abhängigkeit der Resonanz- und Streustrahlung vom Streuwinkel ϑ angegeben werden. H ist der Anteil des resonanzfähigen Isotops im Absorber. Im Falle der resonanten γ -Strahlung ist α_r gleich 1 zu setzen, im Falle der Röntgenstrahlung oder der Konversionselektronen sind α_r die entsprechenden Konversionskoeffizienten.

Für ein Resonanzexperiment mit dem Nachweis von Konversionselektronen — im folgenden „Konversionsresonanz“ genannt — ist ein magnetisches β -Spektrometer gut geeignet. Es gestattet die Trennung von Elektronen und elektromagnetischer Strahlung und vermag aus dem Elektronenuntergrund entsprechend dem Auflösungsvermögen die Konversionslinie herauszublenzen. Diese Methode ist besonders dann von Vorteil, wenn der Absorptionsquerschnitt σ_R schon so groß ist, daß ein Absorber, der im oben definierten Sinne noch als dünn anzusehen ist, auch bezüglich der Konversionselektronen dünn ist, d. h., die Elektronen können in bezug auf das Auflösungsvermögen des Spektrometers praktisch ohne Energieverlust den Absorber verlassen. In diesem Fall stellt die Messung der resonanten elektromagnetischen Strahlung keinen Vorteil dar. Durch Erhöhung der Absorberschichtdicke nimmt die Intensität nicht zu. Andererseits ist bei einem β -Spektrometer die Luminosität im allgemeinen kleiner als bei einer Anordnung zur Messung der elektromagnetischen Strahlung.

Von gleicher Energie wie die Konversionselektronen sind die Photoelektronen. Eine Trennung dieser beiden Elektronenarten ist bis zu

⁶ Der Effekt bei einem Resonanzexperiment mit dickem Absorber ist von A. JESTER, Diplomarbeit am Laboratorium für Technische Physik München, diskutiert worden.

einem gewissen Grade nur durch Ausnutzung der starken Winkelabhängigkeit des Photoeffekts möglich. Aber schon bei geringen Schichtdicken des Absorbers wird die Winkelabhängigkeit durch Vielfachstreuung verschmiert. Unter der Annahme einer isotropen Winkelverteilung von Photo- und Konversionselektronen und Vernachlässigung des innerhalb der Linienbreite des Spektrometers nahezu konstanten Untergrundes ist der Effekt bei dünnem Absorber gegeben durch

$$\eta_R = \frac{\sigma_R}{\sigma_{phr}} \frac{\alpha_r}{1 + \alpha} \frac{H}{r} \quad r = K, L_I, L_{II} \text{ etc.}$$

Während der Photoquerschnitt σ_{phr} mit zunehmenden r stark abnimmt, kann in vielen Fällen α_r für spezielle r besonders große Werte annehmen.

Versuchsaufbau

Als β -Spektrometer wurde eine vereinfachte Art des Kofoed-Hansen-Typs⁷ gebaut (Fig. 1). Der Feldabschnitt verläuft bei diesem Spektrometer parallel zur Schnittgeraden der beiden ebenen Polschuhflächen.

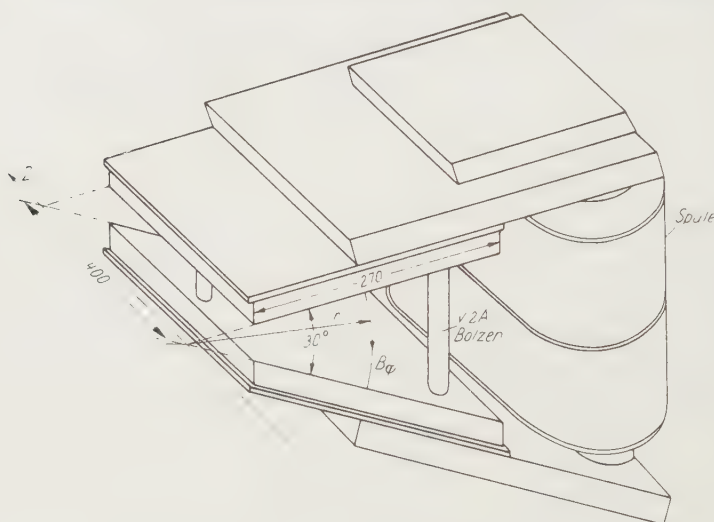


Fig. 1. Spektromettermagnet

Quelle und Fokus liegen auf der Schnittgeraden. Bei einer kreisförmigen Quelle von 4 mm Durchmesser beträgt die Transmission etwa 2%, das Auflösungsvermögen 3%.

Zum Nachweis der Elektronen dient ein bei Atmosphärendruck arbeitendes, methandurchströmtes Glockenzählrohr. Das Fenster von

⁷ KOFOED-HANSEN, O., J. LINDHARD u. O.B. NIELSEN: Kgl. danske Vid. Selsk. mat.-fysiske Medd. **25**, Nr. 16 (1950).

4 mm Durchmesser besteht aus Mylar von 1 mg/cm^2 Dicke. Die Magnetfeldregelung erfolgt mit einem wechselstrombetriebenen Hallgenerator (Siemens FA 24), Kompensationskreis, Niederfrequenzverstärker, phasenempfindlichen Gleichrichter und einem Transduktor, mit dem der Magnetstrom gesteuert wird. Abgesehen von einem langzeitigen und kontrollierbaren Temperaturgang, ist die Feldkonstanz besser als 0,3%. Der Kompensationskreis enthält ein Helipot-Potentiometer, dessen Achse mit einem Fortschaltrelais verbunden ist. Ein Impuls von einem

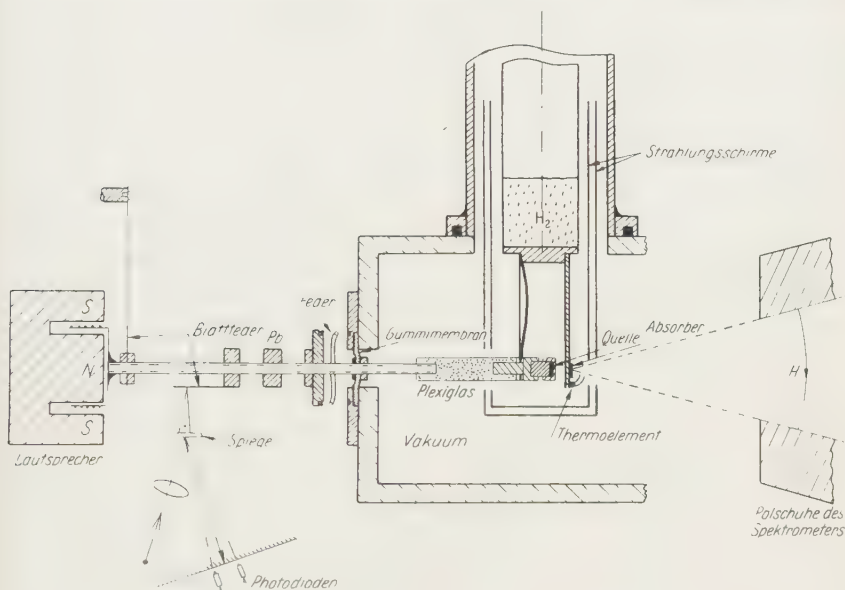


Fig. 2. Anordnung von Quelle, Absorber, Kryostat, Bewegungsantrieb und Spektrometer

Impulsvorwahl-Untersetzer betreibt gleichzeitig dieses Relais und einen Zeitdrucker. Auf diese Weise kann automatisch das B_Q -Spektrum aufgenommen werden.

Im Quellpunkt des Spektrometers befindet sich das kreisförmige Absorberscheibchen von 4 mm Durchmesser, das im Falle von Wolfram aus Pulver besteht, das auf ein Kupferblech aufgewalzt ist (Fig. 2). Der Absorber steht senkrecht zur mittleren Elektronenaustrittsrichtung. Axial hinter dem Absorberscheibchen ist in etwa 4 mm Abstand die Tantal-Metallquelle von ebenfalls 4 mm angebracht. Sie befindet sich zur Abschirmung der Elektronen in einem Kupfertopf von 0,5 mm Wandstärke.

Diese Anordnung mußte aus konstruktiven Gründen gewählt werden. Der wesentliche Nachteil ist einmal, daß die starke Vorwärtsstreuung von Compton-Elektronen besonders stark zum Untergrund beiträgt, zum

anderen, daß bei zu großer Schichtdicke, z.B. infolge von Inhomogenitäten, durch Absorption von resonanzfähigen Quanten in einer Schichtdicke, aus der noch keine Elektronen austreten können, der Konversionsresonanzeffekt vermindert wird. Außerdem muß bei dickeren Absorbern zur Bestimmung von Γ aus dem Geschwindigkeitsspektrum eine größere und schwierigere Korrektur durchgeführt werden, als dies bei Messung der Strahlung in Rückwärtsrichtung der Fall wäre.

Quelle und Absorber sind zur Kühlung mit dem Boden eines Wasserstoffkryostaten thermisch verbunden, der Absorber über ein angelötetes Kupferblech, die Quelle mit einem Bronzefederblech und mehreren dünnen Kupferbändern. Der Kryostat besteht im wesentlichen aus einem 30 cm langen Neusilberrohr von 25 mm Durchmesser und 0,2 mm Wandstärke. Das Rohr befindet sich mit im Hochvakuum des Spektrometers. Alle kalten Teile sind zweifach durch isoliert angebrachte Kupferbleche gegen Wärmestrahlen abgeschirmt. Nur eine kleine Bohrung läßt die Elektronen frei in das Spektrometer gelangen, und eine zweite Bohrung erlaubt die Verbindung der Quelle mit dem Bewegungsantrieb über eine Plexiglasstange. Damit auch eine oberflächliche Erwärmung des Absorbers durch Zustrahlung vermieden wird, befindet sich im elektronenfreien Raum innerhalb des Spektrometers ein mit flüssigem Stickstoff gekühltes Blech, so daß vom Absorber aus nur kalte Flächen zu sehen sind. Neben dem Absorber ist ein Thermoelement angelötet. Der Wasserstoffverbrauch beträgt etwa 40 cm³/h.

Die Quelle wird durch einen Lautsprecher, dessen Trichter und Spinne entfernt wurden, in Bewegung versetzt. Die Führung der Spule erfolgt durch eine Blattfeder. Der Lautsprecher befindet sich außerhalb des Vakuums in etwa 20 cm Abstand von der Quelle. Die Plexiglasstange ist mit der Lautsprecherspule durch eine Gewindestange verbunden. Als Vakuumdurchführung dient eine Gummimembran.

Da die Bewegung sinusförmig mit Netzfrequenz verläuft, genügt zur Bestimmung der momentanen Geschwindigkeit der Quelle die Kenntnis der Amplitude und Phasenlage der Bewegung. Die Amplitude wird mittels eines leichten Drehspiegels gemessen, dessen nadelförmiger Hebelarm von definierter Länge in die Körnung einer kleinen mit-schwingenden Blattfeder eingreift. Durch den Spiegel wird die Abbildung eines gestreckten glühenden Wolframfadens abgelenkt und bei Bewegung die Auffächerung des Bildes mit einem Maßstab gemessen. Neben dem Maßstab befinden sich kleine Photodioden (Siemens TP 50), mit denen die Phasenlage ermittelt wird. Mit Bleigewichten ist die Resonanzfrequenz des schwingenden Systems auf 50 Hz abgestimmt worden. Die Breite der Resonanzkurve beträgt 10 Hz.

Die Zählrohrimpulse gelangen über einen Vorverstärker und Hauptverstärker in einen Diskriminator in dem nur die relativ großen Elek-

tronenimpulse hindurchgelassen werden. Sie erscheinen am Ausgang des Diskriminators als Einheitsimpulse. Bei der Messung der Debye-Temperatur wird ein Zählgerät dem Diskriminator, angeschlossen und auf übliche Weise die Zählrate mit Zeitvorwahl bestimmt. Bei der Messung des Geschwindigkeitsspektrums hingegen muß die Zählrate in möglichst vielen Zeitelementen der Bewegungsperiode der Quelle bekannt sein. Zu diesem Zweck wird ein im Institut erbauter 128-Kanal-Speicher⁸ verwendet, der die Aufgabe hat, während des größten Teils einer Periode von 50 Hz sämtliche Kanäle nacheinander zu öffnen und die während der Öffnungszeiten anfallenden Impulse zu speichern (Fig. 3). Ein Quarzoszillator von 100 kHz mit angeschlossenem Multivibrator-Frequenzumsetzer liefert Impulse mit der konstanten Folgezeit von 150 μ s. Diese gelangen über den Univibrator 1, Tor 1 und Univibrator 2 in den 128-Kanal-Speicher, um dort die Kanalnummer um eines weiterzuschalten. Beginnend mit der Kanalnummer 1, wird nach $127 \times 0,15 = 19,05$ ms der 128. Kanal geöffnet. Gleichzeitig wird beim Umschalten ein Impuls dem Speicher entnommen, der eine Flip-Flop-Stufe anstößt und somit Tor 1 schließt. Beträgt die Netzfrequenz exakt 50 Hz, so ist der 128. Kanal für 0,95 ms, das ist 4,75 % der Periode, geöffnet. Geschlossen wird der 128. Kanal und der erste eröffnet, nachdem Tor 1 wieder geöffnet ist und einen Schaltimpuls hindurchgelassen hat. Dazu muß die Flip-Flop-Stufe wieder umgestoßen sein, was über einen vom Netz betriebenen Phasenschieber und Triggerkreis geschieht.

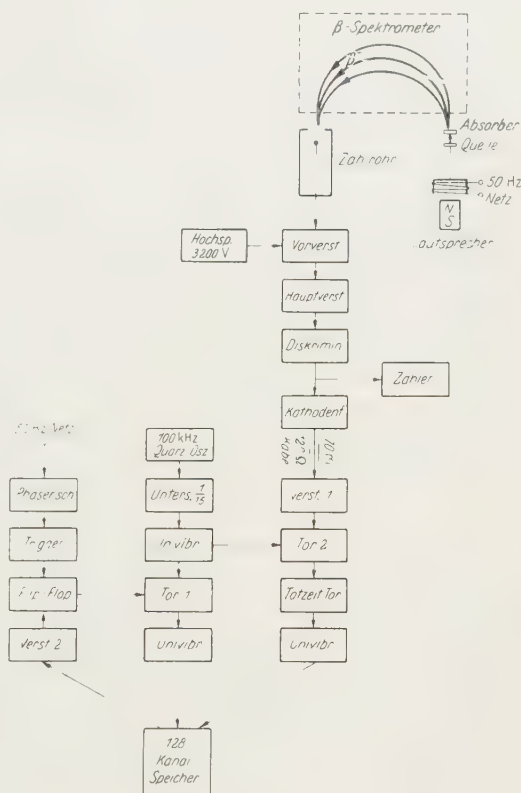


Fig. 3. Blockschaltbild der Elektronik zur Messung des Geschwindigkeitsspektrums

⁸ HELMBERGER, W.: Wird demnächst veröffentlicht.

Das Tor 2 verhindert, daß während des Umschaltens der Kanalnummer Zählrohrimpulse in den Speicher gelangen. Einmal würden solche Impulse den Speicherinhalt stören, zum anderen wird hierdurch erreicht, daß im Mittel die Öffnungszeiten aller Kanäle, bis auf den 128., gleich groß sind. Es wurde mit statistischen Impulsen festgestellt, daß die Konstanz besser als 0,1 % ist. Da die Verarbeitung der Zählrohrimpulse im Speicher 30 μ s in Anspruch nimmt, wird Tor 2 in dem Zeitraum von 40 bis 20 μ s vor dem Umschalten des Kanals geschlossen. Ein Totzeittor sorgt dafür, daß zwei Zählrohrimpulse niemals schneller als in 120 μ s Folge in den Speicher gelangen können, da auch diese Impulse den Speicherinhalt zu stören vermögen.

Durch diese Art der Messung ist also bei harmonischer Bewegung der Quelle jedem Kanal sinusgemäß eine Geschwindigkeit zuzuordnen. Zweimal tritt die Geschwindigkeit Null und zweimal die Maximalgeschwindigkeit auf. Auch bei geschwindigkeitsunabhängiger Zählrate, also ohne Effekt, ist die Zählrate immer noch ortsabhängig. Denn bei der Bewegung ändert sich der mittlere Raumwinkel, unter dem die Quelle den Absorber sieht. In der Taylor-Entwicklung der Ortsabhängigkeit der Zählrate genügt es im allgemeinen, das lineare Glied zu berücksichtigen. Dann aber mittelt sich der Geometrieeffekt heraus, wenn man die Zählraten der Kanäle praktisch gleicher Geschwindigkeit zusammenfaßt.

Messungen an W^{182}

Ta^{182} zerfällt mit einer Halbwertszeit von 115 d über β^- -Zerfall in W^{182} . Durch 24 γ -Übergänge⁹ gehen die angeregten W^{182} -Niveaus, 1,2 bis 1,5 MeV, in den Grundzustand (Spin, Parität: 0+) über. Teilweise wird dabei der erste angeregte 100 keV-Zustand (2+) bevölkert, der allein im folgenden von Interesse ist.

Tantal- und Wolframmetall kristallisieren im raumzentrierten kubischen Gitter. Die Metalle zeigen nur temperaturunabhängigen Spinparamagnetismus der Elektronen im Leitungsband. Eine magnetische Aufspaltung des 100 keV-Niveaus ist daher nicht zu erwarten. Ebenso entfällt die Quadrupolaufspaltung wegen der Symmetrie des Gitters. Dieses aber trifft nur dann zu, wenn die durch den vorhergehenden β^- - und γ -Zerfall verursachten Störungen bis zum Zerfall des 100 keV-Zustands abgeklungen sind. Bei der relativ langen Lebensdauer von etwa 10^{-9} sec ist dieses aber zu erwarten.

Die Ta^{182} -Quelle wurde durch 650stündige Bestrahlung von 16 mg natürlichem Ta-Blech mit thermischen Neutronen im FRM erzeugt. Die Aktivität betrug kurz nach der Bestrahlung etwa 50 mC. Beim Einsetzen

⁹ MURRAY, J. J., F. BOEHM, F. MARMIER and J. W. M. DU MOND: Phys. Rev. 97, 1007 (1955).

der Quelle in den Kupfertopf wurde sie für 10 min auf etwa 250° C erhitzt. Ein eigentliches Tempern wurde nicht vorgenommen. Der Absorber bestand aus Wolfram-Metallpulver, das auf ein Kupferblech aufgewalzt wurde. Das Wolfram war 92,5 %ig in W¹⁸² angereichert. Es wurde aus Oak-Ridge als W-Oxyd bezogen und im Institut mit Wasserstoff reduziert.

In Fig. 4 ist das $B\varrho$ -Spektrum wiedergegeben. Die bei den Photolinien eingetragenen Zahlen stellen die Energie in keV der γ -Quanten dar, die Buchstaben K, L, M die Schale, aus der die Elektronen stammen. Der monotone Untergrund rührt hauptsächlich von Compton-Prozessen der

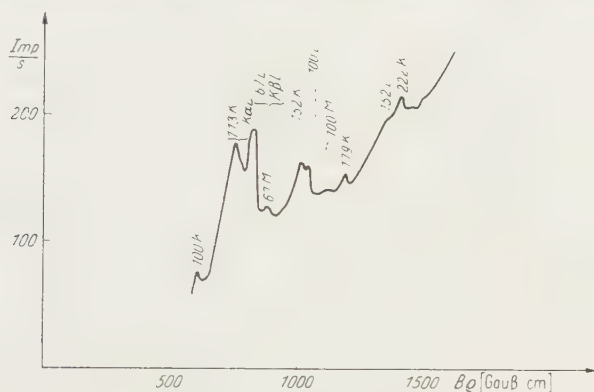


Fig. 4. $B\varrho$ -Spektrum. Ausgezogene Kurve bei 295° K, gestrichelte Kurve bei 22° K aufgenommen

zahlreichen γ -Linien her. Die ausgezogene Kurve ist bei Zimmertemperatur (äußeres Konversionsspektrum), die gestrichelte bei 22° K und ruhender Quelle aufgenommen worden. Bei Zimmertemperatur ist die Resonanzabsorption praktisch gleich Null. Die Differenz der beiden Kurven, geteilt durch die ausgezogene Kurve, ist daher gleich dem Effekt η_R . Die Differenzkurve selbst stellt das innere Konversionsspektrum des 100 keV-Überganges dar. Der größte Effekt von 44% liegt bei der L -Konversionslinie ($L = L_I + L_{II} + L_{III}$).

Theoretisch erhält man für den Photoquerschnitt σ_{phL} unter der Annahme isotroper Elektronenemission $\sigma_{phL} = 250$ barn, für den Konversionsresonanzquerschnitt σ_{RL} bei 22° K

$$\sigma_{RL} = \frac{\alpha_L}{1 + \alpha} \sigma_R = \frac{\alpha_L}{1 + \alpha} f f' \frac{\sigma_0}{2} = 1860 \text{ barn.}$$

Hierbei ist $\alpha_L = 2,9$ und $\alpha = 5,0$. Für $f f'$ liefert die Rechnung mit den Debye-Temperaturen $\Theta_{Ta} = 270^\circ \text{ K}$, $\Theta_W = 380^\circ \text{ K}$ bei 22° K den Wert $f f' = 3,9 \cdot 10^{-2}$. Das Verhältnis $\frac{\sigma_{RL} \cdot H}{\sigma_{phL}} = 6,9$ stimmt etwa mit dem Meßresultat überein.

Bei der Aufnahme der Temperaturgangkurve des Effektes wurde abwechselnd mit ruhender und sinusförmig bewegter Quelle gemessen. Das Spektrometer war dabei fest auf das Maximum der L -Konversionslinie eingestellt. Die Maximalgeschwindigkeit war so groß gewählt, daß die

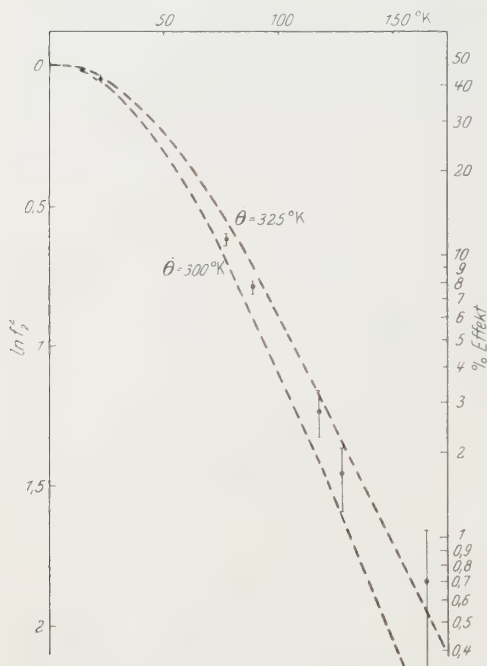


Fig. 5. Temperaturgang des Effektes

kurzzeitige Überlappung der Emissions- und Absorptionskurven in den Umkehrpunkten der Bewegung ($v = 0$) im Mittel nur 2,5 % des Effektes ausmachte. Durch Bildung der Differenz der in dem einen und anderen Fall gemessenen Zählraten konnten langsame und temperaturabhängige Apparatschwankungen ausgeschaltet werden. In Fig. 5 ist der Temperaturgang des Effektes im logarithmischen Maßstab aufgetragen. Die Temperatur bezieht sich auf Quelle und Absorber. Wie der Einleitung zu entnehmen ist, läßt sich f in das Produkt $f = f_1 \cdot f_2$ aufspalten, wobei f_1 von der Temperatur unabhängig ist, während f_2 die hier gemessene

Temperaturabhängigkeit enthält. Es läßt sich zeigen, daß im hier betrachteten Temperaturbereich ausreichend genau gilt:

$$f_2(\Theta_{Ta}, T) \cdot f_2(\Theta_W, T) = f_2^2(\bar{\Theta}, T) \quad \text{wobei} \quad \frac{1}{\bar{\Theta}^3} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\Theta_{Ta}^3} + \frac{1}{\Theta_W^3} \right).$$

Die Meßpunkte sind mit einem Wert $\bar{\Theta} = 313 \pm 8^\circ \text{K}$ in Einklang zu bringen. Nimmt man die aus elastischen Konstanten bestimmte Debye-Temperatur von Wolfram¹⁰ $\Theta_W = 384^\circ \text{K}$ als richtig an, so folgt damit für die Debye-Temperatur von Tantal $\Theta_{Ta} = 280 \pm 10^\circ \text{K}$.

Es muß erwähnt werden, welche Bedeutung die hier gemessene Debye-Temperatur hat. Es ist

$$\ln f_1 \sim - \int_0^\infty \frac{Z(\omega)}{\omega} d\omega \quad \text{und} \quad \ln f_2 \sim - \int_0^\infty \frac{Z(\omega)}{\omega} \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega}{kT}} - 1} d\omega.$$

¹⁰ WILSON, A.H.: The Theory of Metals, p. 143. Cambridge 1954.

Setzt man statt des wirklichen Spektrums ein Debye-Spektrum mit der Debye-Temperatur Θ für $Z(\omega)$ ein, d.h. ein mit ω^2 anwachsendes Spektrum, das bei der Frequenz $\omega_g = \frac{\hbar\Theta}{\hbar}$ abbricht, so lautet die Vorschrift für die zu wählende Debye-Temperatur, daß die entsprechenden Integrale mit dem wirklichen und dem Debye-Spektrum gleich sein sollen. Daraus folgt, daß für f_1 bzw. f_2 die im allgemeinen voneinander verschiedenen Debye-Temperaturen Θ_{DW1} bzw. Θ_{DW2} zu wählen sind. Messungen der spezifischen Wärme ergeben mit dem Integral

$$C \sim \int_0^{\infty} \left(\frac{\hbar\omega}{kT} \right)^2 \frac{e^{\frac{\hbar\omega}{kT}}}{\left(e^{\frac{\hbar\omega}{kT}} - 1 \right)^2} Z(\omega) d\omega$$

eine Debye-Temperatur Θ_C . Auch die aus elastischen Konstanten bestimmte Debye-Temperatur Θ_{el} hat einen anderen Wert. Es läßt sich aber zeigen, daß das wirkliche Spektrum im allgemeinen im Bereich niedriger Frequenzen mit ω^2 anwächst, daß in der Nähe des absoluten Nullpunkts die Temperaturen Θ_{DW2} , Θ_{el} und Θ_C die gleichen sind.

Bei einem Spektrum, das wie Wolfram und Tantal bei etwa der halben Grenzfrequenz ein Maximum besitzt¹¹, ist zu erwarten, daß Θ_{DW1} um etwa 11 % kleiner ist als Θ_{DW2} . Da im Integral von f_2 der niederfrequente Anteil des Schwingungsspektrums sehr viel stärker eingeht als in das Integral der spezifischen Wärme (entsprechend $1/\omega^3$), ist zu erwarten, daß Θ_{DW2} bis zu relativ hohen Temperaturen konstant bleibt, während Θ_C bis zu Temperaturen von 100° K abfällt.

Die oben genannte Debye-Temperatur von Tantal entspricht also Θ_{DW2} . Sie ist um etwa 40 bis 50° höher, als sie durch Messung der spezifischen Wärme erhalten wurde. Es ist möglich, daß die Temperatur, bei der die spezifische Wärme gemessen wurde, noch nicht genügend niedrig war. Sie sollte mit der aus elastischen Konstanten von Tantal berechneten Debye-Temperatur übereinstimmen, die aber nicht bekannt sind.

Im Argonne National Laboratory¹² und in Orsay¹³ wurde der Mößbauer-Effekt am W¹⁸² in Transmissionsexperimenten bei 78° K gemessen. Bei der ersten Gruppe betrug der Effekt 1 %, bei der zweiten $1,2 \pm 0,3$ %. In der vorliegenden Arbeit wurde bei 78° K ein Effekt von $11,5 \pm 0,3$ % gemessen. Er ist also im Falle von W¹⁸² bei einem Konversionsresonanzexperiment um etwa einen Faktor 10 größer als bei einem Transmissionsexperiment. Die Gruppe in Orsay errechnete aus dem erhaltenen Effekt

¹¹ FINE, O.: Phys. Rev. **56**, 1355 (1939).

¹² LEE, L. L., L. MEYER-SCHÜTZMEISTER, J. P. SCHIFFER and D. VINCENT: Phys. Rev. L. **3**, 223 (1959).

¹³ BUSSIÈRE DE NERCY, A., M. LANGEVIN and M. SPIGHEL: J. Phys. Radium **21**, 288 (1960).

$ff' = (8 \pm 2) \cdot 10^{-4}$. Die diesem Wert entsprechenden Debye-Temperaturen liegen wesentlich unter den hier gemessenen, so daß ein Widerspruch in den Resultaten besteht.

Zur Messung der Linienbreite wurde zunächst die Amplitude der mit 50 Hz schwingenden Quelle bestimmt. Mit einem Oszillographen wurde gleichzeitig durch Überlagerung die Phasenlage der Quellenbewegung

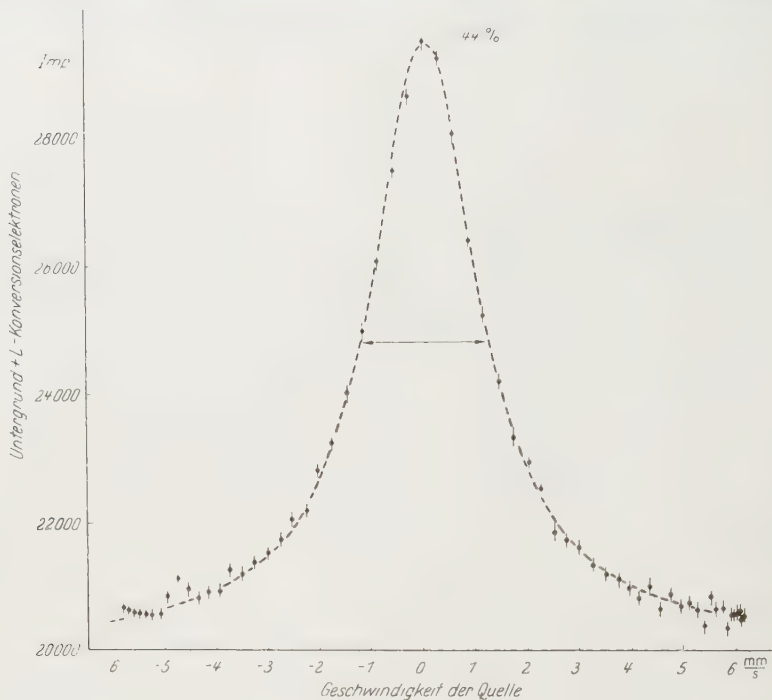


Fig. 6. Geschwindigkeitsspektrum

mit dem Photodiodensignal und die Phasenlage der Kanalschaltimpulse geprüft. Mit dem Phasenschieber wurde die Lage des ungenutzten 128. Kanals in den weniger wichtigen Bereich bei der Maximalgeschwindigkeit gelegt. Durch Abzählen der Kanäle konnten dann die beiden Lagen der Nullgeschwindigkeit ermittelt werden. Während der eigentlichen Messung wurden die Phasenlagen mehrmals kontrolliert und der Kryostat etwa alle 2 Std neu mit flüssigem Wasserstoff gefüllt. Am Ende der Messung wurde der Inhalt des Speichers automatisch ausgedruckt.

Das Ergebnis einer sechsständigen Messung zeigt Fig. 6. Die Ordinate stellt die Summe der Impulse zweier Kanäle etwa gleicher Geschwindigkeit dar. Die Meßpunkte stimmen gut mit der gestrichelt eingezeichneten Lorentz-Kurve überein. Bezüglich der Breite der Kurve muß eine

Korrektur durchgeführt werden. Durch den relativ kleinen Abstand zwischen Quelle und Absorber, der von gleicher Größe im Mittel ist wie der Durchmesser von Quelle und Absorber, tragen auch solche Quanten zum Effekt bei, die die Quelle unter einem Winkel von 45° zur Bewegungsrichtung verlassen. Die Doppler-Geschwindigkeit dieser Strahlen beträgt 71 % der Relativgeschwindigkeit. Eine Berechnung der Geschwindigkeitsverteilung und der daraus resultierenden Verbreiterung der Lorentz-Kurve besagt, daß die wahre Kurve um etwa 18 % schmaler ist als die gemessene. Die Messung der Maximalgeschwindigkeit ist mit einer Unsicherheit von etwa $\pm 10\%$ behaftet. Das Ergebnis lautet somit: $\Gamma = 0,34 \cdot 10^{-6} \text{ eV} \pm 10\%$ oder $T_{\frac{1}{2}} = (1,34 \pm 0,13) \cdot 10^{-9} \text{ sec}$. Dieser Wert der Halbwertszeit des ersten angeregten Zustands von W^{182} stimmt überein mit den elektronischen Messungen von SUNYAR¹⁴: $T_{\frac{1}{2}} = (1,27 \pm 0,1) \cdot 10^{-9} \text{ sec}$ und steht in Widerspruch mit der im Argonne National Laboratory¹² mit dem Mößbauer-Effekt gemessenen Halbwertszeit von $T_{\frac{1}{2}} = (0,62 \pm 0,3) \cdot 10^{-9} \text{ sec}$.

Ist der Absorber im oben definierten Sinne nicht als dünn anzusehen, so müßte die ermittelte Debye-Temperatur von Tantal eine Korrektur zu höheren Temperaturen und die Halbwertszeit eine Korrektur zu längeren Zeiten erfahren. Der Absorber ist in seiner Dicke nicht bekannt. Zudem dürfte er bei dieser Art der Herstellung stark inhomogen sein. Eine Berechnung des Korrekturfaktors ist daher nicht möglich. Aus der Tatsache aber, daß die Debye-Temperatur eher zu groß gemessen wurde und daß die Halbwertsbreite des Geschwindigkeitsspektrums bei 78° K gemessen die gleiche blieb wie bei 22° K , ist zu schließen, daß der Absorber als genügend dünn anzusehen ist.

Herrn Professor H. MAIER-LEIBNITZ möchte ich für die vielen Ratschläge und Diskussionen meinen herzlichen Dank aussprechen.

¹⁴ SUNYAR, A. W.: Phys. Rev. **93**, 1122 (1954).

Aus dem Institut für Technische Physik der Technischen Hochschule Darmstadt

Matrizelemente für die Elektronenkonfiguration f^4

III. Die Eigenzustände des Ho^{3+} -Ions

Von

S. HÜFNER

(Eingegangen am 8. Juni 1961)

Im Anschluß an eine frühere Arbeit¹ werden jetzt die Eigenzustände und die g -Faktoren der Terme des freien Ho^{3+} -Ions berechnet. Die berechneten und die bisher gemessenen g -Faktoren stimmen innerhalb der experimentellen Fehlergrenzen überein.

1. Einleitung

In einer vor kurzem veröffentlichten Arbeit¹ wurden die Energien der Terme des freien Ho^{3+} -Ions berechnet und mit den spektroskopisch bestimmten Werten² verglichen. Die in ¹ berechneten Eigenwerte werden jetzt benutzt, um die zugehörigen Eigenzustände für das freie Ho^{3+} -Ion zu ermitteln. Die Darstellung lehnt sich eng an die in ¹ verwendete an.

2. Die Zustände und die g -Faktoren des freien Ho^{3+} -Ions

Für die bei den Seltenen Erden vorliegende mittlere Kopplung ergeben sich die Zustände $\psi_{\gamma JM} = |f^n \gamma JM_J\rangle$ des freien Ions als Linearkombinationen aller zum gleichen J -Wert gehörigen Russell-Saunders (R-S)-Zustände des betreffenden Ions. Das bedeutet für das Ho^{3+} -Ion mit der Elektronenkonfiguration f^6 :

$$\left. \begin{aligned} |f^6 \gamma JM_J\rangle &= \sum_{WUSL} a_{\gamma J, WUSL} |f^6 WUSLJM_J\rangle \\ &= \sum_i a_i |f^6 WUSLJM_J\rangle. \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

Die Koeffizienten a_i wurden für den in ¹ angegebenen optimalen Wert für die Spin-Bahn-Kopplungskonstante ($\xi = 5,15 F_2$) mit einem IBM 650 Rechenautomaten berechnet; sie sind in Tabelle 1 zusammengestellt. Die Zustände $|f^6 \gamma JM_J\rangle$ werden dabei gekennzeichnet mit einem Strich an den R-S-Symbolen der Terme, aus denen sie für $\xi = 0$ hervorgegangen sind.

¹ HÜFNER, S.: Z. Physik **164**, 257 (1961).

² GROHMANN, I., K. H. HELLWEGE u. H. G. KAHLE: Z. Physik **164**, 243 (1961).

Tabelle 1*. Die Koeffizienten a_i der Eigenfunktionen; die g -Faktoren.

 Alle Terme mit $J=0$

	111 20 5D	211 11 3P	211 30 3P	110 11 3P	220 22 1S	000 00 1S	g'
$^5D'$	+0,957	+0,196	+0,149	-0,151	+0,022	+0,023	1,000
$^3P'$	-0,197	+0,936	+0,224	+0,179	-0,042	-0,031	1,000
$^3P'$	-0,189	-0,090	+0,719	-0,516	+0,337	+0,244	1,000
$^3P'$	+0,091	-0,099	+0,105	+0,691	+0,615	+0,338	1,000
$^1S'$	-0,044	+0,259	-0,632	-0,442	+0,451	+0,365	1,000
$^1S'$	+0,0040	-0,018	+0,029	+0,076	-0,550	+0,831	1,000

 Alle Terme mit $J=1$

	111 10 5F	111 20 5D	211 11 3P	211 20 3D	211 21 3D	211 30 3P	110 11 3P	g'
$^5F'$	+0,903	+0,022	+0,108	+0,366	+0,191	+0,039	+0,00660	0,106
$^5D'$	+0,152	+0,757	+0,361	-0,452	-0,177	+0,175	-0,081	1,229
$^3P'$	-0,218	+0,620	-0,459	+0,496	+0,284	-0,054	-0,164	1,101
$^3D'$	-0,337	+0,00138	+0,748	+0,478	+0,204	+0,222	+0,083	1,059
$^3D'$	-0,016	+0,047	+0,069	-0,370	+0,790	-0,320	+0,359	0,738
$^3P'$	-0,0067	-0,180	-0,143	-0,219	+0,417	+0,725	-0,446	1,277
$^3P'$	+0,0020	+0,083	-0,247	+0,046	-0,106	+0,535	+0,795	1,486

 Alle Terme mit $J=7$

	111 20 5I	211 20 5I	211 21 3K	211 21 3L	211 30 3I	211 30 3K	220 21 1K	g'
$^5I'$	+0,985	+0,038	+0,072	-0,019	-0,034	-0,144	-0,0062	1,174
$^3I'$	-0,068	+0,803	+0,011	-0,312	-0,457	-0,089	-0,190	1,111
$^3K'$	+0,145	+0,162	-0,448	+0,330	-0,119	+0,793	-0,022	1,011
$^3L'$	-0,053	+0,180	+0,138	+0,861	-0,070	-0,327	-0,304	0,915
$^3I'$	+0,012	+0,465	-0,307	-0,0099	+0,815	-0,143	+0,071	1,128
$^3K'$	-0,0032	+0,270	+0,754	+0,125	+0,155	+0,355	+0,439	1,024
$^1K'$	-0,023	+0,073	-0,335	+0,190	-0,289	-0,299	+0,820	1,012

 Alle Terme mit $J=8$

	111 20 5I	211 21 3K	211 21 3L	211 30 3K	211 30 3M	220 21 1L	220 22 1L	g'
$^5I'$	+0,967	+0,118	-0,032	-0,220	-0,0065	+0,011	+0,033	1,241
$^3K'$	+0,242	-0,421	+0,336	+0,739	+0,124	-0,100	-0,281	1,104
$^3L'$	-0,069	+0,155	+0,817	-0,360	+0,408	-0,058	-0,060	1,011
$^3K'$	+0,0068	+0,787	+0,093	+0,452	-0,032	+0,408	-0,032	1,104
$^3M'$	+0,023	-0,139	-0,221	+0,134	+0,736	+0,270	+0,547	0,946
$^1L'$	+0,026	-0,174	+0,398	+0,091	-0,519	+0,159	+0,713	0,978
$^1L'$	-0,0038	-0,342	+0,047	-0,211	-0,079	+0,850	-0,329	1,020

* Aus drucktechnischen Gründen wurden die Tabellenteile nicht in der üblichen Reihenfolge $J=0, 1, 2, \dots$ angeordnet.

	111 00 ⁵ S	111 10 ⁵ F	111 20 ⁵ D	111 20 ⁵ G	211 10 ³ F	211 11 ³ P	211 20 ³ D	211 21 ³ D	211 21 ³ F
¹ 5S'>	+ 0,871	+ 0,199	+ 0,0020	- 0,0136	- 0,057	+ 0,359	+ 0,190	+ 0,085	+ 0,023
¹ 5F'>	- 0,328	+ 0,826	+ 0,032	- 0,012	- 0,135	+ 0,028	+ 0,337	+ 0,177	+ 0,0937
¹ 5D'>	+ 0,030	- 0,073	- 0,141	+ 0,195	- 0,266	- 0,133	+ 0,420	+ 0,177	- 0,214
¹ 5G'>	+ 0,217	+ 0,411	- 0,015	+ 0,471	+ 0,278	- 0,294	- 0,343	- 0,151	+ 0,023
¹ 3F'>	- 0,226	+ 0,134	- 0,319	+ 0,077	+ 0,062	+ 0,667	- 0,301	- 0,201	- 0,035
¹ 3P'>	- 0,066	+ 0,031	+ 0,231	- 0,410	+ 0,554	+ 0,200	+ 0,232	+ 0,149	- 0,294
¹ 3D'>	- 0,158	- 0,264	+ 0,099	+ 0,713	+ 0,010	+ 0,287	+ 0,345	+ 0,176	+ 0,027
¹ 3D'>	+ 0,0011	- 0,016	- 0,031	- 0,020	- 0,105	- 0,0566	- 0,211	+ 0,508	- 0,026
¹ 3F'>	+ 0,038	+ 0,070	+ 0,086	+ 0,160	+ 0,389	- 0,216	+ 0,035	+ 0,043	- 0,428
¹ 3F'>	+ 0,055	- 0,013	- 0,181	- 0,012	+ 0,077	- 0,230	- 0,104	+ 0,256	+ 0,067
¹ 3F'>	+ 0,0083	- 0,085	+ 0,016	- 0,144	+ 0,122	- 0,0998	+ 0,255	+ 0,051	+ 0,562
¹ 3F'>	+ 0,0018	- 0,014	+ 0,017	- 0,030	- 0,014	+ 0,0023	+ 0,111	- 0,196	- 0,419
¹ 3P'>	+ 0,0002	+ 0,0017	+ 0,048	+ 0,0003	+ 0,011	- 0,245	+ 0,058	- 0,143	- 0,020
¹ 1D'>	- 0,020	+ 0,031	+ 0,872	+ 0,072	- 0,254	+ 0,111	- 0,208	- 0,0387	+ 0,0337
¹ 1D'>	+ 0,0064	+ 0,037	- 0,0958	- 0,074	- 0,507	- 0,044	- 0,044	+ 0,0063	- 0,413
¹ 1D'>	- 0,021	- 0,013	+ 0,0042	- 0,0032	- 0,048	+ 0,107	+ 0,132	+ 0,650	- 0,0607
¹ 3D'>	+ 0,0004	- 0,0009	- 0,0011	- 0,0011	- 0,0009	- 0,011	- 0,016	+ 0,046	- 0,016

	111 10 ⁵ F	111 20 ⁵ D	111 20 ⁵ G	211 10 ³ F	211 20 ³ D	211 20 ³ G	211 21 ³ D
¹ 5F'>	+ 0,956	+ 0,0062	+ 0,013	- 0,101	+ 0,189	- 0,041	+ 0,098
¹ 5D'>	+ 0,107	- 0,453	- 0,180	+ 0,596	+ 0,180	+ 0,153	+ 0,089
¹ 5G'>	+ 0,028	+ 0,030	+ 0,884	+ 0,124	- 0,154	+ 0,072	- 0,073
¹ 3F'>	+ 0,058	+ 0,736	- 0,293	+ 0,056	- 0,172	+ 0,216	- 0,031
¹ 3D'>	+ 0,047	+ 0,371	+ 0,048	+ 0,398	+ 0,118	- 0,206	+ 0,107
¹ 3G'>	- 0,200	+ 0,216	+ 0,201	- 0,178	+ 0,787	+ 0,084	+ 0,401
¹ 3D'>	- 0,019	- 0,046	- 0,014	- 0,023	- 0,371	+ 0,0074	+ 0,781
¹ 3F'>	- 0,173	- 0,137	- 0,223	+ 0,075	+ 0,217	- 0,200	+ 0,071
¹ 3G'>	+ 0,0088	- 0,162	- 0,054	- 0,341	+ 0,037	+ 0,737	- 0,021
¹ 3F'>	- 0,015	+ 0,131	+ 0,056	+ 0,545	+ 0,029	+ 0,445	+ 0,024
¹ 3G'>	- 0,0040	- 0,0087	+ 0,025	- 0,051	- 0,034	- 0,262	+ 0,077
¹ 3F'>	- 0,120	+ 0,495	- 0,045	- 0,405	- 0,0050	- 0,070	- 0,223
¹ 1F'>	+ 0,0001	- 0,032	+ 0,0004	- 0,049	- 0,200	+ 0,136	+ 0,332

	111 10 ⁵ F	111 20 ⁵ D	111 20 ⁵ G	111 20 ⁵ I	211 10 ³ F	211 11 ³ H	211 20 ³ G	211 21 ³ F	211 21 ³ G
¹ 5F'>	+ 0,960	- 0,011	- 0,0019	+ 0,022	- 0,067	- 0,012	- 0,098	+ 0,184	- 0,113
¹ 5D'>	- 0,0011	+ 0,548	+ 0,081	+ 0,101	- 0,526	- 0,016	+ 0,118	- 0,029	+ 0,102
¹ 5G'>	+ 0,015	+ 0,048	+ 0,796	- 0,045	+ 0,016	+ 0,056	+ 0,145	+ 0,217	+ 0,356
¹ 5I'>	- 0,014	- 0,0037	- 0,0030	+ 0,951	- 0,0060	+ 0,0033	+ 0,0086	+ 0,0055	+ 0,051
¹ 3F'>	- 0,038	+ 0,443	+ 0,216	- 0,167	+ 0,016	+ 0,015	- 0,169	- 0,078	- 0,297
¹ 3H'>	- 0,013	+ 0,314	+ 0,238	+ 0,206	+ 0,221	- 0,060	- 0,099	- 0,118	- 0,400
¹ 3G'>	+ 0,050	+ 0,559	- 0,482	- 0,062	+ 0,078	+ 0,089	+ 0,170	+ 0,138	+ 0,325
¹ 3F'>	+ 0,010	- 0,132	- 0,0042	+ 0,017	- 0,192	+ 0,796	+ 0,269	- 0,037	- 0,151
¹ 3G'>	+ 0,0058	- 0,086	+ 0,053	- 0,054	- 0,365	- 0,243	+ 0,613	+ 0,089	- 0,181
¹ 3H'>	+ 0,069	- 0,069	- 0,048	+ 0,053	+ 0,356	+ 0,026	+ 0,436	- 0,023	+ 0,184
¹ 3F'>	- 0,027	+ 0,207	+ 0,043	- 0,0020	+ 0,402	+ 0,396	+ 0,063	+ 0,248	+ 0,129
¹ 3G'>	+ 0,0006	- 0,0039	+ 0,042	+ 0,0015	- 0,074	+ 0,093	- 0,337	- 0,0038	+ 0,547
¹ 3H'>	- 0,0058	- 0,098	- 0,042	+ 0,026	- 0,355	+ 0,151	- 0,182	- 0,101	+ 0,047
¹ 3F'>	- 0,019	+ 0,039	- 0,018	- 0,0016	- 0,065	- 0,021	+ 0,061	- 0,462	- 0,114
¹ 3H'>	- 0,0024	+ 0,0022	- 0,016	+ 0,013	- 0,0011	+ 0,041	+ 0,0054	- 0,030	- 0,063
¹ 1G'>	- 0,258	- 0,056	- 0,114	+ 0,042	- 0,184	- 0,051	- 0,141	+ 0,746	- 0,205
¹ 1G'>	- 0,018	- 0,049	+ 0,022	- 0,027	- 0,186	+ 0,301	- 0,267	- 0,055	- 0,086
¹ 1G'>	+ 0,0073	+ 0,0057	+ 0,015	+ 0,0011	- 0,029	+ 0,088	+ 0,065	- 0,150	+ 0,130
¹ 1G'>	+ 0,0013	- 0,0004	+ 0,0010	+ 0,0014	- 0,0027	+ 0,011	- 0,018	- 0,034	+ 0,047

mit $J = 2$

211 30 ³ P	211 30 ³ F	110 10 ³ F	110 11 ³ P	220 20 ¹ D	220 21 ¹ D	220 22 ¹ D	200 20 ¹ D	g'
+0,0868	-0,042	+0,010	+0,050	+0,0765	-0,071	+0,049	+0,0059	1,833
+0,032	-0,069	+0,055	-0,017	+0,062	-0,148	+0,033	-0,033	1,123
-0,040	-0,266	-0,126	-0,0022	-0,247	+0,631	-0,192	+0,095	0,962
-0,107	+0,335	+0,048	-0,012	-0,229	+0,230	-0,158	-0,018	0,908
+0,181	-0,058	-0,026	+0,091	+0,124	+0,374	+0,091	+0,186	1,359
+0,125	+0,344	-0,139	-0,046	-0,231	+0,156	-0,164	-0,049	0,784
+0,126	+0,259	+0,039	-0,012	+0,060	-0,223	+0,017	-0,071	0,739
+0,155	+0,138	+0,112	+0,137	-0,436	-0,033	+0,548	+0,338	1,059
-0,163	-0,271	-0,222	+0,071	+0,466	+0,0092	+0,386	+0,235	0,876
+0,615	-0,0093	+0,071	-0,570	+0,309	+0,122	-0,055	-0,048	1,405
-0,211	+0,321	+0,217	+0,136	+0,352	+0,394	+0,157	+0,215	0,873
-0,023	-0,0017	+0,873	-0,074	+0,012	+0,036	+0,053	+0,012	0,699
+0,599	-0,017	+0,034	+0,726	+0,086	+0,015	+0,098	-0,084	1,478
+0,124	-0,081	-0,0044	-0,113	+0,078	+0,248	+0,012	+0,085	1,381
-0,057	+0,636	-0,203	+0,024	+0,319	+0,023	+0,0046	-0,016	0,713
-0,247	-0,1196	+0,195	+0,269	+0,244	+0,0649	-0,351	-0,277	1,142
+0,019	+0,0064	+0,0375	+0,0076	+0,052	-0,263	-0,535	+0,799	1,000

mit $J = 3$

211 21 ³ F	211 21 ³ G	211 30 ³ F	211 30 ³ G	110 10 ³ F	220 21 ¹ F	g'
+0,138	-0,037	-0,032	-0,0015	+0,087	+0,0025	1,246
-0,270	+0,377	+0,245	-0,215	-0,098	+0,022	1,104
+0,145	+0,166	+0,280	-0,174	+0,101	-0,0082	0,940
+0,070	+0,416	+0,210	-0,255	+0,016	-0,020	1,207
-0,254	-0,501	+0,445	+0,315	-0,135	+0,044	1,017
-0,077	+0,148	-0,123	-0,087	-0,059	+0,016	1,283
-0,142	-0,074	-0,0002	-0,080	+0,321	-0,336	1,254
+0,712	-0,089	+0,396	-0,092	+0,350	+0,027	1,081
-0,0020	-0,112	+0,435	+0,305	-0,045	-0,117	0,878
+0,314	-0,102	-0,501	+0,303	+0,177	-0,038	0,991
-0,021	+0,580	+0,081	+0,738	+0,164	+0,076	0,768
+0,178	+0,050	-0,229	-0,184	+0,611	+0,141	1,184
+0,071	-0,047	-0,0036	-0,033	-0,095	+0,900	1,046

mit $J = 4$

211 21 ³ H	211 30 ³ F	211 30 ³ G	211 30 ³ H	110 10 ³ F	110 11 ³ H	220 20 ¹ G	220 21 ¹ G	220 22 ¹ G	200 20 ¹ G	g'
+0,0061	+0,0092	+0,026	-0,0089	+0,117	+0,0015	-0,021	+0,020	+0,013	+0,023	1,337
+0,266	-0,427	-0,029	-0,278	-0,061	+0,116	-0,116	+0,027	+0,126	+0,035	1,232
-0,092	+0,174	-0,314	+0,038	+0,125	-0,0041	+0,025	-0,0047	-0,094	-0,018	1,129
-0,161	-0,015	-0,027	+0,222	+0,0050	-0,117	-0,011	+0,016	+0,046	+0,029	0,621
-0,341	+0,124	+0,220	+0,379	-0,061	-0,162	-0,219	+0,143	+0,381	+0,192	1,052
+0,285	+0,433	+0,211	-0,339	-0,096	+0,156	+0,090	-0,086	-0,259	-0,148	1,072
-0,116	+0,378	-0,219	+0,128	+0,029	-0,065	+0,067	-0,044	-0,203	-0,083	1,234
-0,191	+0,098	+0,122	-0,125	-0,058	+0,066	-0,313	+0,049	-0,153	-0,083	0,889
+0,037	+0,126	+0,340	+0,304	-0,028	-0,126	+0,273	-0,209	-0,045	-0,130	1,035
+0,374	+0,212	+0,068	-0,129	0	+0,019	-0,230	+0,047	+0,591	+0,150	1,026
-0,025	+0,432	-0,119	+0,038	+0,174	-0,023	+0,511	-0,206	+0,127	-0,0079	1,102
+0,075	+0,073	+0,661	+0,080	+0,130	+0,061	-0,056	-0,159	+0,042	-0,256	1,045
-0,196	+0,360	-0,119	-0,242	-0,084	+0,170	+0,541	-0,097	+0,432	+0,167	1,046
-0,038	+0,035	-0,119	-0,036	+0,842	-0,050	-0,050	-0,118	+0,057	-0,118	1,233
+0,151	-0,0005	-0,105	+0,495	+0,044	+0,841	-0,0050	+0,067	+0,0068	-0,016	0,806
+0,097	+0,171	+0,050	-0,114	+0,389	+0,038	-0,158	+0,112	+0,069	+0,106	1,217
+0,629	+0,124	-0,261	+0,380	-0,072	-0,379	+0,029	-0,104	+0,039	-0,061	0,868
+0,178	+0,040	+0,241	+0,047	+0,164	-0,076	+0,292	+0,642	-0,284	+0,493	1,008
+0,021	+0,016	+0,060	+0,025	+0,021	+0,055	-0,169	-0,624	-0,225	+0,721	1,000

Alle Terme

	111 10 ⁵ F	111 20 ⁵ G	111 20 ⁵ I	211 11 ³ H	211 20 ³ G	211 20 ³ I	211 21 ³ G
⁵ F'⟩	+0,908	-0,0996	+0,123	-0,035	-0,180	-0,0097	-0,296
⁵ G'⟩	+0,335	+0,710	-0,091	+0,081	+0,146	+0,046	+0,415
⁵ I'⟩	-0,069	-0,0018	+0,954	+0,022	+0,029	+0,062	+0,077
³ H'⟩	+0,186	-0,640	-0,192	+0,108	+0,128	+0,104	+0,366
³ G'⟩	-0,125	+0,242	-0,153	+0,157	-0,171	+0,339	-0,456
³ I'⟩	+0,036	-0,066	+0,042	+0,196	+0,172	+0,703	+0,029
³ G'⟩	+0,010	+0,0092	+0,014	-0,490	+0,143	-0,177	-0,053
³ H'⟩	+0,033	-0,023	+0,039	+0,731	+0,421	-0,335	-0,152
³ G'⟩	-0,0074	+0,013	+0,0090	+0,048	+0,0061	+0,388	-0,097
³ H'⟩	+0,064	+0,073	-0,030	-0,235	+0,723	+0,0026	-0,084
³ I'⟩	-0,037	+0,054	-0,0080	+0,239	-0,279	-0,278	-0,131
³ H'⟩	-0,058	+0,126	-0,073	+0,161	+0,037	+0,182	-0,260
³ I'⟩	+0,025	+0,058	+0,0043	+0,150	-0,264	+0,014	+0,572
³ H'⟩	-0,109	+0,246	-0,141	+0,307	+0,0077	+0,273	-0,472

Alle Terme

	111 20 ⁵ G	111 20 ⁵ I	211 11 ³ H	211 20 ³ I	211 21 ³ H	211 21 ³ K	211 30 ³ H
⁵ G'⟩	-0,336	+0,154	-0,226	-0,102	+0,517	+0,065	-0,634
⁵ I'⟩	-0,030	+0,977	+0,025	+0,045	-0,085	+0,033	+0,134
³ H'⟩	-0,043	+0,097	+0,067	+0,105	+0,059	-0,414	-0,090
³ I'⟩	-0,032	-0,024	+0,753	+0,309	+0,139	+0,0020	-0,211
³ H'⟩	-0,053	+0,0011	+0,107	-0,055	-0,292	+0,301	-0,014
³ K'⟩	+0,928	+0,093	-0,037	-0,018	+0,072	+0,0099	-0,277
³ H'⟩	+0,081	-0,0062	+0,044	+0,0034	+0,464	+0,731	+0,189
³ I'⟩	+0,020	+0,028	+0,510	-0,076	+0,233	-0,169	+0,063
³ K'⟩	+0,106	-0,017	-0,207	-0,0078	+0,510	-0,366	+0,297
³ H'⟩	-0,015	-0,0001	+0,018	-0,015	+0,174	+0,012	+0,522
³ I'⟩	-0,0049	-0,029	-0,237	+0,931	+0,0030	+0,064	+0,0074
³ I'⟩	+0,022	-0,0061	-0,0068	+0,060	+0,187	-0,160	+0,107
³ I'⟩	+0,059	-0,015	-0,178	+0,123	+0,237	-0,240	+0,403

Alle Terme mit J = 9

	211 21 ³ L	211 30 ³ M	g'
³ L'⟩	+0,943	+0,334	1,101
³ M'⟩	-0,334	+0,943	1,023

Alle Terme mit J = 10

	211 30 ³ M	220 22 ¹ N	g'
³ M'⟩	+0,988	-0,151	1,097
¹ N'⟩	+0,151	+0,988	1,001

Der g -Faktor eines Terms berechnet sich, wie man leicht einsieht, als Summe über die Produkte aus dem Erwartungswert und dem g -Faktor der in dem Zustand enthaltenen R-S-Zustände, d. h.:

$$g' = \sum_i a_i^2 g_i, \quad (2)$$

wobei i über alle in dem Zustand auftretenden R-S-Zustände läuft.

mit $J = 5$

$211\ 21\ ^3H$	$211\ 30\ ^3G$	$211\ 30\ ^3H$	$211\ 30\ ^3I$	$110\ 11\ ^3H$	$220\ 21\ ^1H$	$220\ 22\ ^1H$	g'
+0,050	+0,146	-0,043	-0,0009	+0,014	-0,054	-0,014	1,359
-0,184	-0,331	+0,121	-0,0075	-0,030	+0,111	+0,037	1,240
-0,139	-0,043	+0,195	-0,042	-0,107	+0,031	+0,012	0,914
-0,280	-0,199	+0,395	-0,037	-0,212	+0,153	+0,049	1,165
-0,409	+0,321	+0,429	-0,135	-0,199	+0,106	+0,043	1,079
+0,252	-0,0061	-0,343	-0,321	+0,150	+0,343	+0,076	0,917
-0,121	+0,193	-0,020	+0,209	+0,113	+0,756	+0,156	1,008
-0,141	+0,168	-0,150	+0,207	+0,099	+0,154	+0,048	1,039
+0,256	-0,144	+0,151	+0,845	-0,093	-0,0094	-0,069	0,864
+0,356	+0,247	+0,300	-0,157	-0,239	-0,200	-0,072	1,128
+0,579	-0,242	+0,248	-0,181	-0,343	+0,359	+0,176	1,032
-0,166	+0,209	+0,421	-0,024	+0,237	-0,242	+0,696	1,032
+0,216	+0,712	+0,111	+0,085	+0,0045	+0,030	-0,043	1,183
-0,396	+0,351	+0,450	-0,106	-0,127	-0,061	-0,047	1,089

mit $J = 6$

$211\ 30\ ^3I$	$211\ 30\ ^3K$	$110\ 11\ ^3H$	$220\ 20\ ^1I$	$220\ 22\ ^1I$	$200\ 20\ ^1I$	g'
+0,097	-0,0999	+0,323	+0,033	+0,059	+0,014	1,174
-0,041	-0,077	-0,081	-0,0087	-0,018	-0,0076	1,072
-0,062	+0,862	+0,043	+0,122	+0,154	+0,058	0,874
-0,467	-0,186	+0,027	+0,134	+0,035	+0,011	1,109
+0,267	-0,028	+0,112	+0,464	+0,669	+0,243	1,008
+0,029	-0,0068	+0,210	+0,014	+0,035	+0,019	1,306
-0,048	+0,359	-0,268	-0,040	-0,026	+0,028	0,962
+0,775	-0,024	-0,085	-0,105	-0,079	-0,140	1,064
-0,097	-0,246	-0,322	+0,482	+0,218	-0,099	1,059
-0,082	+0,014	+0,723	-0,036	+0,140	-0,381	1,138
+0,253	-0,041	+0,0495	+0,0066	-0,0057	-0,063	1,032
-0,074	-0,110	-0,077	-0,687	+0,547	+0,361	1,005
+0,123	-0,101	+0,144	+0,284	-0,330	+0,661	1,037

Die auf diese Weise bestimmten g -Faktoren sind in der letzten Spalte von Tabelle 1 aufgeführt.

3. Vergleich mit dem Experiment

Bisher sind aus dem Experiment die g -Faktoren von sechs Termen bekannt. Für jeden Term stimmen die aus den Kristallfeldkomponenten mit $\bar{\mu} = \pm 1$ und $\bar{\mu} = \pm 2$ des Äthylsulfates bestimmten Werte innerhalb der Fehlergrenzen überein, so daß sich Einflüsse des Kristallfeldes auf die g -Faktoren hieraus nicht ableiten lassen³. In Spalte 3 von Tabelle 2 ist von den beiden Werten für jeden Term jeweils der mit der kleineren Fehlergrenze angegeben. Die Übereinstimmung mit den aus Tabelle 1

³ KAHLE, H. G.: Z. Physik **161**, 486 (1961).

übernommenen theoretischen Werten ist gut. Die Termzuordnung erfolgt dabei im Anschluß an¹.

Tabelle 2. *Deutung der bisher analysierten Gruppen*

Term	Bisherige Termbezeichnung	$\xi_{\text{experimentell}}$	$\xi_{\text{theoretisch}}$
$^5F_5'$	D	$1,34 \pm 0,05$	1,359
$^5S_2'$	E_I	$1,79 \pm 0,05$	1,833
$^5F_4'$	E_{II}	$1,37 \pm 0,08$	1,337
$^5F_3'$	F	$1,28 \pm 0,06$	1,246
$^5F_2'$	G	$1,11 \pm 0,03$	1,123
$^3K_8'$	H	$1,07 \pm 0,07$	1,104

Mein Dank gilt Herrn Professor HELLWEGE und Herrn Dr. KAHLE für wertvolle Diskussionen, Herrn cand. phys. URBAN für die Durchführung der Rechnungen sowie dem AEG Forschungsinstitut in Frankfurt a. M. und dem Institut für praktische Mathematik der Technischen Hochschule Darmstadt für die Überlassung von Rechenzeit.

Aus dem Institut für theoretische Physik der Universität Freiburg i. Brsg.

Formfaktor des π -Mesons und Struktur der Nukleonen

Von

H. SALECKER

Mit 10 Figuren im Text

(Eingegangen am 25. April 1961)

Recent measurements of electron-proton scattering at Stanford have shown that the electric and magnetic form factors are not equal. Therefore, the isotopic vector parts of the form factors G_e^v and G_m^v are recalculated with unsubtracted dispersion relations in the 2π -approximation. For the isotopic scalar parts we use $G_e^s(s) \approx G_e^v(s)$ and $G_m^s(s) \approx 0$ which is known to be valid for moderate energy-momentum transfer s . We obtain a simple closed expression for the electromagnetic form factor of the pion F_π in terms of the scattering length a_1 and the effective range r_1 of the π - π -scattering in the state $L = T = 1$. a_1 is roughly known from pion production by pions. With this value and a suitable r_1 , F_π has a resonance in the region of time-like energy-momentum transfer; and the pion rms-radius becomes $r_\pi^2 = (0.82 \times 10^{-13} \text{ cm})^2$. The calculated anomalous magnetic moment, the electric and the magnetic rms-radii of the proton are then within 10% of the experimental values, the electric charge within 30%. Moreover, the proton form factors are different from each other and up to an energy-momentum transfer of $s = \frac{-q^2}{m_\pi^2} = 23$ within the experimental error of the new measurements. The deviations for higher values of the energy-momentum transfer may be explained in terms of the isotopic scalar parts of the form factors. In this case the electric form factor of the neutron will be different from zero in that region and the magnetic form factor of proton and neutron will no longer be equal. For comparison with other experiments we also calculate the $\pi^+ - \pi^-$ cross section with neglect of other states than $L = T = 1$. Under this assumption the $\pi - \pi$ cross section has a resonance for low energy-momentum transfer.

Die neuen Experimente von HOFSTADTER, BUMILLER und CROISSIAUX¹ haben gezeigt, daß der elektrische Formfaktor und der Formfaktor des anomalen magnetischen Moments beim Proton für größere Energie-Impuls-Übertragungen (ab $s = -q^2/m_\pi^2 \approx 15$) voneinander verschieden werden*. Von da ab bleibt der elektrische Formfaktor ungefähr konstant ($\approx 0,45$), während derjenige des anomalen magnetischen Moments bis $s = -q^2/m_\pi^2 = 42,3$ nahezu auf null abgefallen ist. Das Proton bestimmt sich also bei diesen Energie-Impuls-Übertragungen wieder wie

* In unserer Metrik gilt $p^2 = E^2 - \mathfrak{p}^2$ ($\hbar = c = 1$).

¹ HOFSTADTER, R., F. BUMILLER and M. CROISSIAUX: Phys. Rev. Letters **5**, 263 (1960).

ein Dirac-Teilchen mit etwa halber Elementarladung (da der elektrische Formfaktor nicht nur die Ladungsverteilung, sondern auch die Verteilung des regulären magnetischen Moments beschreibt). Die Ladungsverteilung des Protons scheint somit einen im Vergleich zum mittleren quadratischen Radius sehr konzentrierten inneren Kern zu besitzen. Ob bei noch größeren s der Einfluß des anomalen magnetischen Moments verschwindend klein bleibt oder vielleicht wieder zunimmt (z.B. mit negativem Vorzeichen), ist gegenwärtig unbekannt.

Damit sind gleich eine ganze Reihe neuer Aufgaben für die theoretische Beschreibung der Struktur der Nukleonen gestellt in einem Augenblick, in dem die alten Fragen noch keineswegs ganz befriedigend beantwortet waren. Diese betrafen hauptsächlich die Werte für $s = -q^2/m_\pi^2 = 0$ (also das anomale magnetische Moment und die RMS-Radien) und für kleine s . Dispersionstheoretische Rechnungen hatten gezeigt, daß wenigstens beim magnetischen Formfaktor ein halbwegs quantitatives Verständnis für $s = 0$ ² und auch für relativ kleine Energie-Impuls-Übertragungen³ erreicht werden kann, wenn man sich auf den 2π -Mesonen-Beitrag beschränkt. Dabei spielt der elektromagnetische Formfaktor des π -Mesons F_π eine wesentliche Rolle, wie man aus dem zugehörigen Diagramm (Fig. 5) unmittelbar entnimmt. Beschränkt man sich bei F_π ebenfalls auf den 2π -Beitrag, so gilt jetzt das Diagramm der Fig. 2. Man sieht, daß dabei die π -Meson- π -Meson-Streuamplitude entscheidend eingeht, über die natürlich auch keine weiteren Informationen vorliegen. Berücksichtigt man nur eine π - π -Wechselwirkung über virtuelle Nukleon-Antinukleon-Paare, so kann selbst beim magnetischen Formfaktor keine quantitative Übereinstimmung erreicht werden, wie wir eben erwähnt haben. Nun gibt es aber eine Reihe von Hinweisen experimenteller und theoretischer Art dafür (vgl. Abschnitt 6), daß auch eine direkte π -Meson- π -Meson-Wechselwirkung vorhanden ist, die bei den eben genannten Arbeiten nicht betrachtet wurde. Wählt man diese in geeigneter Weise, so läßt sich beim Formfaktor des anomalen magnetischen Moments Übereinstimmung innerhalb der recht weiten Fehlergrenzen mit den älteren Experimenten von HOFSTADTER u. Mitarb.⁴ erzielen⁵, während beim elektrischen Formfaktor die älteren Meßwerte zu steil abfallen, um mit der berechneten Kurve im Rahmen der Fehlergrenzen zusammenzufallen.

² CHEW, G. F., R. KARPLUS, S. GASIOROWICZ and F. ZACHARIASEN: Phys. Rev. **110**, 265 (1958). — FEDERBUSH, P., M. L. GOLDBERGER and S. B. TREIMAN: Phys. Rev. **112**, 642 (1958).

³ EISENLOHR, H., u. H. SALECKER: Z. Naturforsch. **14a**, 699 (1959).

⁴ HERMAN, R., and R. HOFSTADTER: High-Energy Electron Scattering Tables. Stanford University Press, Stanford, California, 1960 und dort zitierte frühere Arbeiten.

⁵ FRAZER, W. R., and J. R. FULCO: Phys. Rev. Letters **2**, 365 (1959); — Phys. Rev. **117**, 1609 (1960). — SALECKER, H.: Phys. Verh. **10**, 144 (1959).

In beiden Punkten bringen nun die neuen Experimente durch die getrennte Bestimmung des elektrischen und des magnetischen Formfaktors mit einem Fehler von etwa 10 % wesentliche Änderungen, so daß eine neue Untersuchung für beide Formfaktoren möglich und nötig erscheint. Bei der Interpretation der experimentellen Ergebnisse nehmen wir an, daß die Quantenelektrodynamik bei den hier betrachteten Energie-Impuls-Übertragungen noch gültig ist und verweisen bezüglich der Diskussion dieser Frage und insbesondere einer etwa möglichen Kompensation zwischen Abänderungseffekten der Quantenelektrodynamik und der Struktur der Nukleonen auf frühere Arbeiten⁶.

1. Formfaktor des π -Mesons

Der elektromagnetische Formfaktor des π -Mesons F_π ist bereits früher definiert worden^{2,7}. Er befriedigt die Dispersionsbeziehung ($\hbar = c = 1$)

$$F_\pi(x) = 1 - \frac{x}{\pi} \int_4^\infty \frac{\text{Im } F_\pi(-x')}{x'(x' + x - i\varepsilon)} dx'. \quad (1)$$

Hier ist $x = -\sigma^2/m_\pi^2$ mit dem Quadrat der Energie-Impuls-Übertragung σ^2 und der Masse des π -Mesons m_π . Wir haben eine subtrahierte Dispersionsbeziehung benutzt, so daß $F_\pi(0) = 1$, da wir aus experimentellen Gründen hauptsächlich an dem Verhalten von F_π für relativ kleine $|\sigma^2|$ (gegen M^2 , M Nukleonenmasse) interessiert sind. Mit Hilfe der Unitaritätsbedingung kann man schließen⁸, daß die

Phase φ_π von F_π im Gebiet $(2m_\pi)^2 \leq \sigma^2 \leq (4m_\pi)^2$ gleich der Phase δ_1 der π -Meson- π -Meson-Streuung im Zustand mit dem Drehimpuls $L = 1$ und dem isotopen Spin $T = 1$ ist. (F_π ist ein Vektor im isotopen Spinraum⁷.)

Zur Auswertung beschränken wir uns nun auf den 2π -Beitrag zu F_π . Da dies der Zwischenzustand kleinster Masse ist, wird er für den hier interessierenden Bereich jedenfalls den bedeutendsten Anteil liefern. Bei der Besprechung der Gültigkeitsgrenzen (Abschnitt 5) kommen wir noch genauer darauf zurück. Wir ersetzen also das Diagramm der Fig. 1 durch Fig. 2. Dann gilt die obige Phasenbeziehung

$$\varphi_\pi = \delta_1 \quad (2)$$

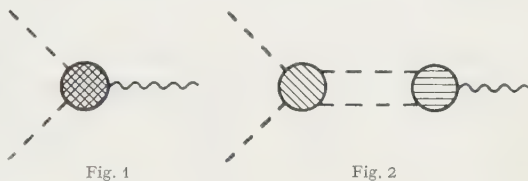


Fig. 1. Diagramm für den elektromagnetischen Formfaktor des π -Mesons (--- π -Mesonenlinie, ~~~ Photonenlinie bzw. elektromagnetisches Feld)

Fig. 2. 2π -Mesonenbeitrag zum Formfaktor des π -Mesons

⁶ SALECKER, H.: Z. Physik **160**, 385 (1960).

⁷ SALECKER, H.: Z. Naturforsch. **15a**, 1023 (1960).

⁸ FUBINI, S., Y. NAMBU and V. WATAGHIN: Phys. Rev. **111**, 329 (1958).

im ganzen Integrationsbereich, und die Dispersionsbeziehung (1) wird, wie man auch aus Fig. 2 unmittelbar sieht, zu der Integralgleichung [da jetzt $\text{Im } F_\pi(-x) = \text{tg } \delta_1(-x) \cdot \text{Re } F_\pi(-x)$]

$$F_\pi(x) = 1 - \frac{x}{\pi} \int_4^\infty \frac{\text{tg } \delta_1(-x') \cdot \text{Re } F_\pi(-x')}{x'(x' + x - i\varepsilon)} dx', \quad (3)$$

die nach dem allgemeinen Verfahren von MUSKHELISHVILI und OMNÈS⁹ gelöst werden kann. Setzt man noch voraus, daß die Lösung von (3) für schwache π - π -Wechselwirkung mit der durch Iteration gewonnenen Lösung übereinstimmt, so erhält man schließlich

$$F_\pi(x) = \exp \left[- \frac{x}{\pi} \int_4^\infty \frac{\delta_1(-x')}{x'(x' + x - i\varepsilon)} dx' \right]. \quad (4)$$

Man erkennt direkt, daß (4) im Rahmen der angegebenen Näherung eine Lösung von (3) darstellt.

Damit haben wir den Formfaktor des π -Mesons durch die Phase der π - π -Streuung im Zustand $L=1$, $T=1$ ausgedrückt. Diese Größe ist natürlich ebenfalls unbekannt. Man kann versuchen, sie unter Berücksichtigung der betrachteten Näherung mit Hilfe einer Mandelstamschen Dispersionsbeziehung zu bestimmen. Dabei bleiben aber zwei Parameter unbestimmt¹⁰. Unter diesen Umständen ist es wesentlich einfacher, für δ_1 einen sog. "effective range"-Ansatz zu machen, wobei ebenfalls zwei noch zu bestimmende Parameter eingehen, die aber durch andere Experimente bereits teilweise festgelegt sind, wie wir im letzten Abschnitt sehen werden. Der effektive-Reichweiten-Ansatz ist gerade für relativ kleine Impuls-Übertragungen (im Schwerpunktsystem) geschaffen worden. Man setzt für beliebige L ¹¹

$$k^{2L+1} \text{ctg } \delta_L = \frac{1}{a_L^{2L+1}} + \frac{1}{2} r_L^{-2L+1} k^2 + \dots \quad (5)$$

Also für $L=0$

$$k \text{ctg } \delta_0 = \frac{1}{a_0} + \frac{1}{2} r_0 k^2 + \dots \quad (5a)$$

und für $L=1$, das hier besonders interessiert

$$k^3 \text{ctg } \delta_1 = \frac{1}{a_1^3} + \frac{1}{2} \frac{1}{r_1} k^2 + \dots \quad (5b)$$

⁹ MUSKHELISHVILI, N. J.: Singular Integral Equations. Groningen, Holland: P. Noordhoff N.V. 1953. — OMNÈS, R.: Nuovo Cim. **8**, 316 (1958).

¹⁰ CHEW, G. F., and S. MANDELSTAM: Phys. Rev. **119**, 467 (1960). — MOFFAT, J. W.: Phys. Rev. **121**, 926 (1961).

¹¹ Vgl. z. B. YAMAGUCHI, Y.: Suppl. Progr. Theor. Phys. **7**, 1 (1959).

Dabei bedeuten k den Schwerpunktsimpuls, a_L die Streulänge und r_L die effektive Reichweite, wobei (5) so geschrieben wurde, daß a_L und r_L für beliebiges L die Dimension einer Länge haben. Die effektive Reichweitenformel stellt also eine Entwicklung nach Potenzen von k^2 dar, wobei die Reihe nach dem Glied mit k^2 abgebrochen wird. Bekanntlich ist die effektive Reichweitentheorie bei der Proton-Proton- und der Proton-Neutron-Streuung sehr erfolgreich gewesen. Selbstverständlich wird das asymptotische Verhalten von δ durch (5) nicht wiedergegeben. Außerdem ist δ immer reell für reelle a_L und r_L , was natürlich nur unterhalb der Schwelle für inelastische Prozesse richtig ist. Diese Beschränkung ist aber gerade im Sinne unserer Näherung (2), so daß die effektive Reichweitenformel für unsere Betrachtung angemessen erscheint.

In unserem Falle ($L=1$, $T=1$) erhält man aus (5b)

$$\delta_1 = \arctg \frac{a_1^3 k^3}{1 + \frac{1}{2} \frac{a_1^3}{r_1 k^2}} \quad (6)$$

und für den Schwerpunktsimpuls bezogen auf $m_\pi(x < 0)$

$$\kappa = \frac{k(-x)}{m_\pi} = \sqrt{-\frac{x}{4} - 1}. \quad (7)$$

Bezieht man die Längen a_1 und r_1 noch auf die Compton-Wellenlänge $1/m_\pi$ des π -Mesons $a'_1 = a_1 m_\pi$, $r'_1 = r_1 m_\pi$, so bekommt man nach (4), (6) und (7)

$$F_\pi(x) = \exp \left[-\frac{x}{\pi} \int_4^\infty \frac{\arctg \frac{a_1'^3 \sqrt{(x'/4) - 1}}{1 + \frac{1}{2} \frac{a_1'^3}{r_1'} \left(\frac{x'}{4} - 1 \right)}}{x' (x' + x - i\varepsilon)} dx' \right]. \quad (8)$$

Das Integral (8) ist trotz seines komplizierten Aufbaus exakt auswertbar. Durch partielle Integration läßt sich zunächst der \arctg beseitigen. Die verbleibende Integration kann durch Partialbruchzerlegung ausgeführt werden. Dazu muß man die Nullstellen des Nennerpolynoms

$$\kappa^6 + \frac{1}{4} \frac{1}{r_1'^2} \kappa^4 + \frac{1}{a_1'^3 r_1'} \kappa^2 + \frac{1}{a_1'^6} = (\kappa^2 - \alpha_1)(\kappa^2 - \alpha_2)(\kappa^2 - \alpha_3) = 0 \quad (9)$$

bestimmen. Im physikalisch interessanten Bereich gilt (vgl. Abschnitt 3)

$$\alpha_1 < 0, \quad \sqrt{-\alpha_2} = a + bi, \quad \sqrt{-\alpha_3} = a - bi; \quad (10)$$

damit erhält man für $x > -4$

$$F_\pi(x) = \frac{(1+a)^2 + b^2}{1 + \frac{1}{4} \frac{1}{\alpha_1}} - \frac{\sqrt{\frac{x}{4} + 1 + \sqrt{-\alpha_1}}}{\frac{x}{4} + 1 + 2a \sqrt{\frac{x}{4} + 1 + a^2 + b^2}} \quad (11)$$

und für $x < -4$

$$F_{\pi}(x) = \frac{(1+a)^2 + b^2}{1 + \sqrt{1-x_1}} \times \left. \begin{aligned} & 2a \left(-\frac{x}{4} - 1 \right) + \sqrt{1-x_1} \left(\frac{x}{4} + 1 + a^2 + b^2 \right) + i \sqrt{-\frac{x}{4} - 1} \left(\frac{x}{4} + 1 + a^2 + b^2 - 2a \sqrt{1-x_1} \right) \\ & \times \frac{1}{\left(\frac{x}{4} + 1 + a^2 + b^2 \right)^2 + 4a^2 \left(-\frac{x}{4} - 1 \right)} \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

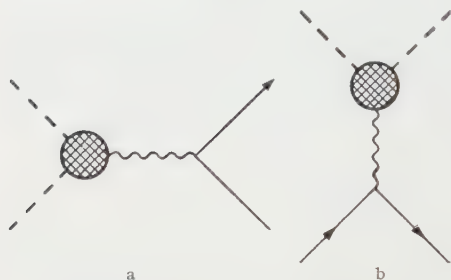


Fig. 3. a Diagramm für die π -Meson-Elektron-Streuung, wobei die starke Wechselwirkung durch den Formfaktor des π -Mesons exakt berücksichtigt wird und die elektromagnetische Wechselwirkung in erster Näherung (\leftarrow Elektronenlinie). b Diagramm für $e^+ + e^- \rightarrow 2\pi$ in derselben Näherung wie bei der π - e -Streuung

Auf diese Weise ist F_{π} in beiden Fällen durch die Wahl der Streulänge a_1 und der effektiven Reichweite r_1 der π - π -Streuung im Zustand $L = T = 1$ eindeutig festgelegt.

Für $x > -4$ bleibt F_{π} reell also insbesondere im Bereich mit raumartigem Argument ($x > 0$), wie es sein muß. Dieses Gebiet kann durch π -Meson-Elektron-Streuung experimentell untersucht werden (vgl. Fig. 3a)⁷. Für $x < -4$

ist dagegen F_{π} komplex. Dieser Bereich spielt für die Struktur der Nukleonen eine wesentliche Rolle, wie man aus Fig. 5 sieht. Experimentell könnte man ihn durch Elektron-Positron Paarvernichtung mit Erzeugung zweier π -Mesonen entsprechend Fig. 3b prüfen⁷.

2. Zusammenhang mit den Formfaktoren der Nukleonen

Der quantitative Zusammenhang zwischen der elektromagnetischen Struktur der Nukleonen und dem Formfaktor des π -Mesons wird be-

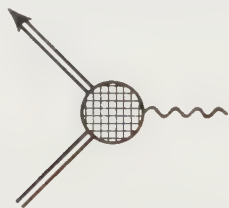


Fig. 4. Diagramm für die elektromagnetischen Formfaktoren der Nukleonen (\Leftarrow Nukleonenlinie)

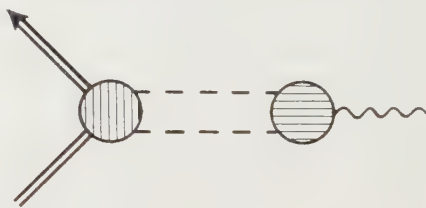


Fig. 5. 2π -Mesonenbeitrag zu den Formfaktoren der Nukleonen

sonders einfach, wenn man sich hier ebenfalls auf den 2π -Beitrag beschränkt. Man ersetzt dann das allgemeine Diagramm der Fig. 4 durch Fig. 5. Die Beschränkung auf den 2π -Beitrag ist wieder im Sinne unserer bereits im letzten Abschnitt eingeführten Näherung. Außerdem

sieht man aus den Dispersionsbeziehungen (18) für die Formfaktoren auch noch einmal explizit, daß bei relativ kleinen Energie-Impuls-Übertragungen s , wie sie in den Experimenten von HOFSTADTER u. Mitarb. vorkommen, der 2π -Beitrag am wesentlichsten sein wird. Wir kommen bei der Besprechung der Gültigkeitsgrenzen im Abschnitt 5 noch genauer darauf zurück.

Allgemein kann man sowohl den elektrischen Formfaktor als auch den Formfaktor des anomalen magnetischen Moments von Proton und Neutron in einen isoskalaren und einen Isovektor-Anteil zerlegen

$$\left. \begin{aligned} G^p(s) &= G^S(s) + G^V(s) \\ G^n(s) &= G^S(s) - G^V(s) \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

Wegen der Neutralität des Neutrons gilt außerdem

$$G_e^S(0) = G_e^V(0) = \frac{e}{2} \quad (14a)$$

und wegen der Kleinheit der Neutron-Elektron-Wechselwirkung (vgl. Abschnitt 3)

$$\overline{r_{e,S}^2} \approx \overline{r_{e,V}^2}. \quad (14b)$$

G_e^S und G_e^V haben also auch die gleiche Steigung im Nullpunkt. Daraus folgt für nicht zu große s

$$G_e^S(s) \approx G_e^V(s), \quad (15)$$

was auch experimentell innerhalb der ziemlich weiten Fehlergrenzen für $0 \leq s \leq 10$ wahrscheinlich gemacht worden ist¹². Beim Formfaktor des anomalen magnetischen Moments gilt dagegen ($\mu_K = e/2M$)

$$\left. \begin{aligned} G_m^S(0) &= -0,06 \mu_K \\ G_m^V(0) &= 1,85 \mu_K \end{aligned} \right\} \quad (16)$$

und (vgl. Abschnitt 3)

$$\overline{r_{m,V}^2} \approx \overline{r_{m,S}^2}. \quad (16a)$$

Für nicht zu große s ist also G_m^S vernachlässigbar gegenüber G_m^V , was experimentell ebenfalls einigermaßen bestätigt erscheint¹³. Damit erhält man für nicht zu große s

$$\left. \begin{aligned} G_e^p(s) &\approx 2G_e^V(s), & G_e^n(s) &\approx 0 \\ G_m^p(s) &\approx G_m^V(s), & G_m^n(s) &\approx -G_m^V(s) \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

Die Beziehungen (17) erlauben es, bereits die isotopen Vektorformfaktoren mit der hauptsächlich am Proton gewonnenen Erfahrung zu vergleichen, ohne daß die sehr schwierig zu berechnenden isoskalaren Anteile bekannt sind. Durch unsere eben eingeführte 2π -Mesonen-Näherung sind die isoskalaren Anteile sowieso ganz vernachlässigt.

¹² SOBOTKA, S.: Phys. Rev. **118**, 831 (1960) u. dort zitierte frühere Arbeiten.

¹³ FRIEDMAN, J. I., H. W. KENDALL and P. A. M. GRAM: Phys. Rev. **120**, 992 (1960).

Der Begriff „nicht zu große $s = -q^2/m_\pi^2$ “ ist dabei natürlich nicht festgelegt; doch deuten die vorhandenen Experimente darauf hin, daß dieser Bereich einen wesentlichen Teil der Hofstadterschen Messungen enthält.

Wir benutzen sowohl für den elektrischen wie für den magnetischen Formfaktor unsubtrahierte Dispersionsbeziehungen

$$G_{e,m}^V(q^2) = \frac{1}{\pi} \int_{4m_\pi^2}^{\infty} \frac{\text{Im } G_{e,m}^V(\sigma^2)}{\sigma^2 - q^2 - i\varepsilon} d\sigma^2, \quad (18)$$

um möglichst viele Daten aus der Theorie zum Vergleich mit der Erfahrung zu gewinnen. Es wird sich nämlich zeigen, daß bei unserem F_π auch der elektrische Formfaktor ohne Subtraktion genügend gut konvergiert.

Wir gehen jetzt zu unserer bereits oben besprochenen 2π -Mesonen-Näherung über. Wie man aus der zugehörigen Fig. 5 entnimmt, ist dann der absorptive Anteil $\text{Im } G_{e,m}^V(\sigma^2)$ gegeben durch²

$$\text{Im } G_{e,m}^V(\sigma^2) = F_\pi^*(\sigma^2) g_{e,m}^V(-\sigma^2), \quad (19)$$

wobei $g_{e,m}^V(-\sigma^2)$ nach Fig. 5 den elektrischen bzw. anomalen magnetischen Anteil der Amplitude für den Prozeß $\pi + \pi \rightarrow N + \bar{N}$ also für die Vernichtung zweier π -Mesonen in ein Nukleon-Antinukleon-Paar darstellt (im Zustand $L = T = 1$). Postuliert* man eine doppelte Dispersionsbeziehung für die $\langle \pi\pi | N\bar{N} \rangle$ -Amplitude¹⁴, so können die analytischen Eigenschaften der $g^V(-\sigma^2)$ in der komplexen σ^2 -Ebene leicht überblickt werden. Man hat dabei nicht nur einen Verzweigungsschnitt längs der reellen σ^2 -Achse $-\infty < \sigma^2 \leq m_\pi^2 (4 - (m_\pi^2/M^2))$ infolge der π -Meson-Nukleon-Streuung zu berücksichtigen, sondern auch für $4m_\pi^2 \leq \sigma^2 < \infty$ entsprechend einer π -Meson- π -Meson-Wechselwirkung. Da die Formfaktoren G reell sind (für $q^2 < 0$, d.h. raumartig), gilt dasselbe auch für ihre absorptiven Anteile; also müssen nach (19) die g^V dieselbe Phase haben wie F_π . F_π hat aber nach Abschnitt 1 (in der hier betrachteten Näherung) die Phase δ_1 der π - π -Streuung im Zustand $L = T = 1$. Setzt man den Beitrag, der mit der π - N -Streuung verknüpft ist und F_π als gegeben voraus, so wird die Dispersionsbeziehung für die g^V zu einer Integralgleichung, die ganz entsprechend wie im ersten Abschnitt nach dem allgemeinen Verfahren von MUSKHELISHVILI und OMNÈS gelöst werden kann⁹. Man erhält wie oben ($x = -\sigma^2/m_\pi^2$)

$$g_{e,m}^V(x) = \frac{F_\pi(-x)}{\pi} \int_{-\infty}^{4 - (m_\pi^2/M^2)} \frac{\text{Im } g_{e,m}^V(x')}{(x' + x - i\varepsilon) F_\pi(x')} dx'. \quad (20)$$

* Ein strenger Beweis ist hier ebenso wie bei den Dispersionsbeziehungen für die Formfaktoren selbst noch nicht gelungen.

¹⁴ MANDELSTAM, S.: Phys. Rev. **112**, 1344 (1958); **115**, 1741, 1752 (1959).

Nach Fig. 5 wird der absorptive Anteil der $g^V(x')$ durch die π -Meson-Nukleon-Streuamplitude bestimmt. Im Gebiet $4 - (m_\pi^2/M^2) > x' > 0$ gibt es zur π -N-Streuamplitude nur den Beitrag, bei dem im Zwischenzustand ein Nukleon allein vorhanden ist; Energie- und Impulserhaltung sind hier für einen unphysikalischen Energiewert erfüllt (der sog. Einnukleonenpol in der komplexen σ^2 -Ebene). Für $x' < 0$ kann dann zunächst elastische π -N-Streuung stattfinden (sog. Rückstreuterme), und später sind immer weitere inelastische Prozesse möglich. In der unmittelbaren Umgebung des Einnukleonenpols ist das Ergebnis der Störungsrechnung exakt (das man leicht angeben kann). Aber schon die Berechnung der Rückstreuterme ist sehr problematisch. Wie FEDERBUSH, GOLDBERGER und TREIMAN² selbst bemerken, ist es nicht einmal sicher, daß das Vorzeichen dieses Terms stimmt, geschweige denn die Größenordnung. Dieser Sachverhalt wird besonders unterstrichen durch die Tatsache, daß die mit den Rückstreuterme berechnete Ladung des Protons $2G_e^V(0) \approx 0$ ausfällt. In Anbetracht dessen ziehen wir es vor, ganz auf die Rückstreuterme zu verzichten und uns auf den Beitrag des Einnukleonenpols zu beschränken. In der Nähe von $x=0$, wo die Einnukleonensterme ihr Maximum besitzen, ist $F_\pi \approx 1$, was wir näherungsweise in das Integral (20) einsetzen. Für den magnetischen Anteil ist im Zusammenhang mit den älteren Experimenten von HOFSTADTER u. Mitarb. bereits von FRAZER und FULCO⁵ bemerkt worden, daß diese Approximation wahrscheinlich innerhalb von 10% richtig ist. FEDERBUSH, GOLDBERGER und TREIMAN² haben aber gezeigt, daß die so berechneten $g^V(x)$ im Gebiet $\sigma^2 \geq (2M)^2$ die Unitaritätsbedingung erheblich verletzen, die dann die Amplitude $\langle 2\pi | N\bar{N} \rangle$ nach oben begrenzt, weil dieser Prozeß dort reell vorkommen kann. Es wird sich aber erweisen, daß unser π -Mesonen-Formfaktor den Einfluß der $g^V(x)$ für $\sigma^2 \geq (2M)^2$ bereits so stark unterdrückt, daß sich das Ergebnis mit Abschneiden bei $\sigma^2 = (2M)^2$ in (18) und die Integration über den ganzen Bereich kaum unterscheiden. Die Unitaritätsbedingung ist also sozusagen insgesamt wieder von selbst erfüllt, so daß wir für $g^V(x)$ unbesorgt die störungstheoretisch berechneten Einnukleonensterme benutzen können. Diese sind bereits früher bestimmt worden bzw. lassen sich aus der früheren Arbeit leicht ableiten³. Man erhält im Rahmen dieser Näherung, wenn man noch $F_\pi(-x)$ in (20) abspaltet, also $g_{e,m}^V(x) = F_\pi(-x) g_{e,m}^{V,0}(x)$ setzt

$$g_{e,m}^{V,0}(x) = 2ef^2\gamma_l^2 \left\{ \frac{x-1}{4} \frac{1}{x\left(\eta^2 - \frac{x}{4}\right)} \times \right. \\ \left. \times \left\{ \frac{2}{y} \left(1 - \frac{1}{y} \arctg y\right) - \frac{x}{4\left(\eta^2 - \frac{x}{4}\right)} \left[\arctg y - \frac{3}{y} \left(1 - \frac{1}{y} \arctg y\right) \right] \right\} \right\} \quad (21)$$

und

$$g_m^{V,0}(x) = \frac{e}{2M} f^2 \eta^4 \frac{2 \left(\frac{x}{4} - 1 \right)}{\int_0^1 \sqrt{\left(\frac{x}{4} - 1 \right)^2 + \left(\frac{x}{4} - 1 \right)^2} dx} \left\{ \arctan y - \frac{3}{y} \left(1 - \frac{1}{y} \arctan y \right) \right\} \quad (22)$$

wobei

$$\eta = \frac{M}{m_\pi}, \quad y = \frac{2 \sqrt{\left(\frac{x}{4} - 1 \right) \left(\eta^2 - \frac{x}{4} \right)}}{(x/2) - 1}$$

und $f^2 = 0,08$ das Quadrat der renormierten π -Meson-Nukleon-Kopplungskonstanten bedeuten. Mit diesen Näherungen bekommt man jetzt aus (18), (19), (20) ($s = -q^2/m_\pi^2$)

$$G_{e,m}^V(s) = \frac{1}{\pi} \int_0^\infty \frac{|F_\pi(-x)|^2 g_{e,m}^{V,0}(x)}{x + s - i\varepsilon} dx. \quad (23)$$

Hier sind F_π durch (12) und die $g^{V,0}(x)$ durch (21) bzw. (22) explizit gegeben. Man sieht aber sofort, daß die letzte Integration nicht mehr geschlossen durchgeführt werden kann.

3. Numerische Auswertung für die Struktur der Nukleonen

Zur numerischen Ausführung der Integration (23) müssen die Streulänge und die effektive Reichweite der π -Meson- π -Meson-Streuung im Zustand $L = T = 1$ festgelegt werden. Bei der Streulänge liegen einige (noch sehr unsichere) Bestimmungen aus der π -Meson-Erzeugung durch π -Mesonen an Nukleonen vor, sowie theoretische Erwägungen¹⁵. Danach ist a_1 etwa in der Nähe von $0,5 \cdot (1/m_\pi)$ also $a'_1 \approx 0,5$, während die effektive Reichweite bei den dortigen sehr geringen Schwerpunktsimpulsen vernachlässigt werden konnte. r_1 muß deshalb bei uns geeignet angepaßt werden. Aber auch der Wert für a_1 ist so unsicher, daß wir außerdem noch den Einfluß anderer Werte untersuchen werden.

Die Auswertung mit einer elektronischen Rechenmaschine liefert die beste Übereinstimmung mit der Erfahrung für die Parameter

$$a'_1 = 0,5, \quad r'_1 = -0,164. \quad (24)$$

Es ist bemerkenswert, daß die Streulänge gerade etwa den Wert der obigen unabhängigen Bestimmungen annimmt. Nach (9) und (10) gehören dazu die Wurzeln

$$\sqrt{-\alpha_1} = 3,65; \quad a = 0,302; \quad b = 1,455. \quad (24a)$$

Damit erhält man

$$G_m^V(0) = 1,67 \mu_K, \quad G_e^V(0) = 0,65 e \quad (25)$$

¹⁵ IGI, K., u. K. KWARABAYASHI: Progr. Theor. Phys. **20**, 576 (1958). — RODBERG, L. S.: Phys. Rev. Letters **3**, 58 (1959). — SATO, I., A. TAKAHASHI u. Y. UEDA: Progr. Theor. Phys. **22**, 617 (1959). — ISHIDA, K., A. TAKAHASHI u. Y. UEDA: Progr. Theor. Phys. **23**, 731 (1960). — MIYAMOTO, Y.: Progr. Theor. Phys. **24**, 840 (1960).

für den Vektoranteil des anomalen magnetischen Moments und der Ladung des Nukleons. Wie man sieht, stimmt $G_m^V(0)$ bis auf 10% mit dem experimentellen Wert $1,85\mu_K$ und $G_e^V(0)$ bis auf etwa 30% mit dem experimentellen Wert $0,5e$ überein. Die mittleren quadratischen Radien lassen sich ebenfalls leicht aus (23) bestimmen

$$\overline{r^2} = - \frac{1}{m_\pi} \frac{6}{GV(0)} \frac{d}{ds} G(s) \Big|_{s=0}. \quad (26)$$

Daraus ergibt sich mit (24)

$$\overline{r_{e,V}^2} = \frac{0,40}{m_\pi^2} = (0,89 \cdot 10^{-13} \text{ cm})^2 \quad (26a)$$

$$\overline{r_{m,V}^2} = \frac{0,456}{m_\pi^2} = (0,95 \cdot 10^{-13} \text{ cm})^2. \quad (26b)$$

Aus den Definitionen (13) und (26) folgt mit (14a) (Neutralität des Neutrons) für die experimentell bestimmbaren mittleren quadratischen Radien von Proton und Neutron

$$\overline{r_{e,p}^2} = \frac{1}{2} (\overline{r_{e,S}^2} + \overline{r_{e,V}^2}), \quad \overline{r_{e,n}^2} = \frac{1}{2} (\overline{r_{e,S}^2} - \overline{r_{e,V}^2}). \quad (27)$$

$\overline{r_{e,n}^2}$ ist wegen der (gemessenen) sehr kleinen Elektron-Neutron-Wechselwirkung¹⁶ gegenüber dem Hofstadterschen Wert für $\overline{r_{e,p}^2}$ vernachlässigbar klein. Daraus folgt, daß $\overline{r_{e,S}^2} \approx \overline{r_{e,V}^2}$ und deshalb

$$\overline{r_{e,V}^2} \approx \overline{r_{e,p}^2}, \quad (28)$$

so daß wir bereits den mittleren quadratischen Radius des Vektoranteils allein mit der Erfahrung beim Proton vergleichen dürfen. Nach den Messungen von HOFSTADTER u. Mitarb.⁴ ist $\overline{r_{e,p}^2} = [(0,8 \pm 0,1) \cdot 10^{-13} \text{ cm}]^2$; unser $\overline{r_{e,V}^2}$ stimmt also innerhalb des experimentellen Fehlers von etwa 10% mit dem Meßwert überein. Bei den mittleren quadratischen Radien des anomalen magnetischen Moments erhält man dagegen aus (13) und (26)

$$\left. \begin{aligned} \overline{r_{m,p}^2} &= \frac{1}{G_m^p(0)} (G_m^S(0) \overline{r_{m,S}^2} + G_m^V(0) \overline{r_{m,V}^2}), \\ \overline{r_{m,n}^2} &= \frac{1}{G_m^n(0)} (G_m^S(0) \overline{r_{m,S}^2} - G_m^V(0) \overline{r_{m,V}^2}). \end{aligned} \right\} \quad (29)$$

Hier sind die verschiedenen Anteile der anomalen magnetischen Momente experimentell gut bekannt; dagegen kennt man ihre mittleren quadratischen Radien nur schlecht, weil sie aus modellabhängigen Daten von größeren s her extrapoliert worden sind³. Immerhin scheint danach $\overline{r_{m,p}^2} \approx \overline{r_{m,n}^2}$ zu gelten⁴. Dann werden die Beziehungen (29) einfach, so daß

$$\overline{r_{m,V}^2} \approx \overline{r_{m,S}^2} \approx \overline{r_{m,p}^2}. \quad (30)$$

¹⁶ FOLDY, L.L.: Rev. Mod. Phys. **30**, 471 (1958) und dort zitierte frühere Arbeiten.

Nach Messungen von HOFSTADTER⁴ und PANOFSKY¹⁷ liegt $\sqrt{r_{m,p}^2}$ etwa zwischen $0,8$ und $1 \cdot 10^{-13}$ cm, was mit dem hier berechneten Wert (26) ebenfalls gut übereinstimmt.

Interessanter ist der Verlauf der auf eins normierten Formfaktoren für größere s . Nach (17) erhalten wir für nicht zu große s

$$F_e^V(s) = \frac{G_e^{I'}(s)}{G_e^V(0)} \approx F_e^p(s), \quad F_m^V(s) = \frac{G_m^{I'}(s)}{G_m^V(0)} \approx F_m^p(s) \approx F_m^n(s), \quad (31)$$

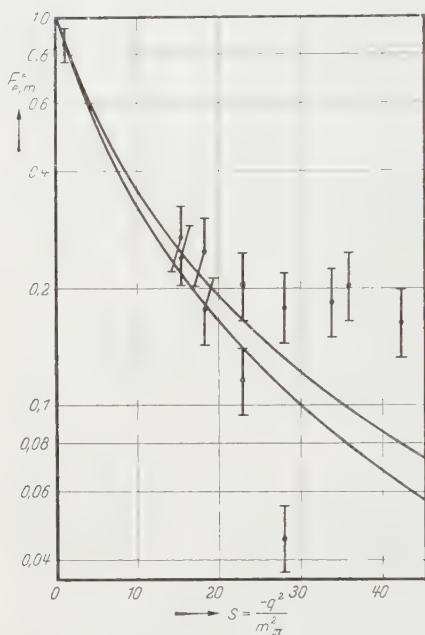


Fig. 6. Die Quadrate der Isevektoranteile der Formfaktoren der Nukleonen in Abhängigkeit von der Energie-Impuls-Übertragung $s = -q^2/m_\pi^2$. Die obere Kurve stellt den elektrischen Formfaktor dar, die untere den Formfaktor des anomalen magnetischen Moments. Dazu sind noch die Meßpunkte von HOFSTADTER, BUMILLER und CROISSIAUX mit ihren Fehlergrenzen eingezeichnet (die obere Reihe von Meßpunkten bezieht sich auf den elektrischen, die untere auf den magnetischen Formfaktor). Die drei Meßwerte des magnetischen Formfaktors für $s = -q^2/m_\pi^2 = 33,8; 35,9$ und $42,3$ fallen außerhalb des Diagramms; sie sind gleich $0,0256; 0,0117$ und $0,00755$

so daß wir im Rahmen unserer Näherung bereits die Isevektoranteile der Formfaktoren direkt mit der Erfahrung beim Proton vergleichen dürfen. In Fig. 6 haben wir die nach (23) mit den Werten (24) berechneten normierten Formfaktoren aufgetragen. Dazu sind die neuen Meßwerte von HOFSTADTER, BUMILLER und CROISSIAUX¹ für den elektrischen Formfaktor und den Formfaktor des anomalen magnetischen Moments beim Proton eingezeichnet. Man sieht, daß unsere Kurven bis $s = -q^2/m_\pi^2 \approx 23$ innerhalb des experimentellen Fehlers verlaufen. Für noch größere Werte von s ist erstens zu erwarten, daß unsere Näherung bei der Berechnung der Isevektoranteile nicht mehr gut ist und daß vor allem auch die isoskalaren Anteile einen spürbaren Einfluß besitzen. Wir kommen im fünften Abschnitt noch genauer darauf zurück.

Vorhin haben wir erwähnt, daß die Einnukleonenterme (21), (22) die Unitaritätsbedingung ver-

letzten. Schneidet man in (23) die Integration bei $x = 4M^2/m_\pi^2$ ab, um einen Eindruck von der Größe dieses Einflusses zu gewinnen, so erhält man

$$G_m^V(0) = 1,67\mu_K, \quad G_e^V(0) = 0,645e,$$

¹⁷ PANOFSKY, W. K. H., and E. A. ALLTON: Phys. Rev. **110**, 1155 (1958).

während die Kurven für $F_e^V(s)$ und $F_m^V(s)$ mit den Kurven ohne Abschneiden in Fig. 6 innerhalb der Zeichengenauigkeit zusammenfallen. Es zeigt sich also, daß ein merklicher Einfluß weder auf das anomale magnetische Moment und die berechnete Nukleonenladung, noch auf die mittleren quadratischen Radien und die normierten Formfaktoren zu erkennen ist. Der Formfaktor des π -Mesons fällt in dem fraglichen Gebiet bereits so stark ab, daß die Unitaritätsbedingung insgesamt von selbst erfüllt wird.

Da die Streulänge a_1 nur sehr ungenau und die effektive Reichweite r_1 der π - π -Streuung im Zustand $L = T = 1$ noch gar nicht durch andere

Tabelle. Qualitatives Verhalten der beobachtbaren Größen in Abhängigkeit von der Streulänge a_1 und der effektiven Reichweite r_1 . $G_m^V(0)$ ist nahezu unabhängig von a_1

∞			kleiner	größer	größer	größer	kleiner
\uparrow			\uparrow	\uparrow	\uparrow	\uparrow	\uparrow
a_1			$G_e^V(0)$	$\frac{r_{e,V}^2}{r_{e,V}^2}$	$\frac{r_{m,V}^2}{r_{m,V}^2}$	$ F_\pi(x_{\max}) ^2$	x_{\max}
\downarrow			\downarrow	\downarrow	\downarrow	\downarrow	\downarrow
0			größer	kleiner	kleiner	kleiner	größer
$-\infty$		größer	größer	größer	größer	größer	kleiner
\uparrow		\uparrow	\uparrow	\uparrow	\uparrow	\uparrow	\uparrow
$1/r_1$		$G_m^V(0)$	$G_e^V(0)$	$\frac{r_{e,V}^2}{r_{e,V}^2}$	$\frac{r_{m,V}^2}{r_{m,V}^2}$	$ F_\pi(x_{\max}) ^2$	x_{\max}
\downarrow		\downarrow	\downarrow	\downarrow	\downarrow	\downarrow	\downarrow
$+\infty$		kleiner	kleiner	kleiner	kleiner	kleiner	größer

Experimente festgelegt werden, müssen wir jetzt diskutieren, wie sich die Ergebnisse bei einer Veränderung von (24) verschieben. Dabei zeigt es sich, daß $G_m^V(0)$ durch a_1' nur sehr wenig beeinflusst wird, während r_1' die Größe von $G_m^V(0)$ wesentlich bestimmt. Größere Werte von $1/r_1'$ (insbesondere positive) geben ein zu kleines anomales magnetisches Moment. Im einzelnen sieht man das qualitative Verhalten der beobachtbaren Größen in Abhängigkeit von a_1' und r_1' aus der Tabelle.

Im Prinzip kann man ebenso wie beim Formfaktor des π -Mesons die Formfaktoren der Nukleonen auch im Bereich zeitartiger Energie-Impuls-Übertragungen ($s < 0$) erhalten, indem man die $G_{e,m}(s)$ zu komplexen s analytisch fortsetzt. Der zeitartige Bereich spielt physikalisch bei den Prozessen $e^+ + e^- \leftrightarrow N + \bar{N}$ für $s = -q^2/m_\pi^2 \leq -(2M/m_\pi)^2 \approx -180$ eine Rolle. Die Formfaktoren $G_{e,m}(s)$ sind dann aber komplex; wir können deshalb nicht überall in derselben Weise wie bisher vorgehen. Außerdem ist die Energie-Impuls-Übertragung $q^2/m_\pi^2 \geq 180$ viel zu groß, um dort noch die 2π -Mesonen-Näherung anzuwenden. Unsere jetzige Näherungsmethode kann nur für $|q^2/m_\pi^2| < M^2/m_\pi^2 \approx 45$ vernünftig sein.

4. Numerische Auswertung für die Struktur des π -Mesons

Der durch (24) ebenfalls festgelegte Formfaktor des π -Mesons (11), (12) hat auch unabhängig von der Struktur der Nukleonen für sich erhebliches Interesse, wie bereits in einer früheren Arbeit besprochen

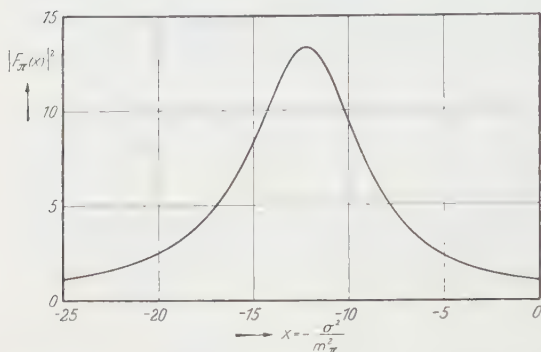


Fig. 7. Das Absolutquadrat des Formfaktors des π -Mesons in Abhängigkeit von der Energie-Impuls-Übertragung im zeitartigen Bereich, d. h. in dem für die Nukleonenstruktur und für $e^+ + e^- \rightarrow 2\pi$ (Fig. 3b) wesentlichen Gebiet

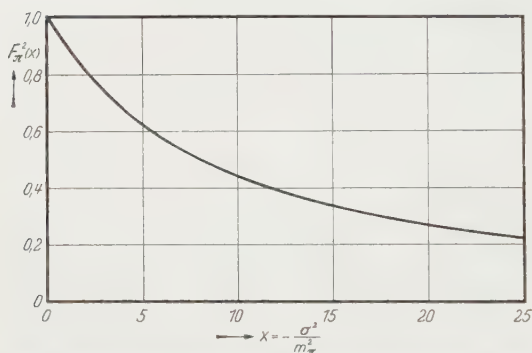


Fig. 8. Das Quadrat des π -Mesonen-Formfaktors im Bereich raumartiger Energie-Impuls-Übertragungen. Dieser Bereich ist für die π -Meson-Elektron-Streuung wichtig (Fig. 3a)

wurde⁷. Im Gegensatz zu der damaligen phänomenologischen Diskussion haben wir jetzt einen theoretisch begründeten Ausdruck erhalten, der im Bereich raumartiger Energie-Impuls-Übertragung nach Fig. 3a durch π -Meson-Elektron-Streuung und für zeitartige Energie-Impuls-Übertragungen nach Fig. 3b durch Elektron-Positron-Paarvernichtung mit Erzeugung zweier π -Mesonen experimentell untersucht werden kann. Wir haben deshalb in Fig. 7 $|F_\pi(x)|^2$ für $x < 0$ (zeitartiger Bereich) aufgetragen. Man sieht, daß $|F_\pi|^2$ in der Nähe von $x = -12,2$ ein starkes Maximum besitzt. Für diese Energie-Impuls-Übertragung wird also der Prozeß $e^+ + e^- \rightarrow 2\pi$ eine ausgesprochene Resonanz zeigen (vermehrt um den Faktor $|F_\pi(x_{\max})|^2 \approx 13,4$ gegenüber der Rechnung mit punktförmigem π -Meson). Für noch kleinere x fällt $|F_\pi|^2$ ziemlich rasch ab, da die Halbwertsbreite nur etwa $7m_\pi^2$ beträgt. Asymptotisch verhält sich $|F_\pi|^2$ wie $1/x$, wie man aus (12) erkennt.

Die Lage des Maximums wird durch den Abfall der normierten Nukleon-Formfaktoren für größere s bestimmt. Da dann bereits die isoskalaren Anteile merklich sein können, liefert der Vergleich mit der Erfahrung in diesem Punkte keine eindeutige Aussage. Verschiebt man aber das Maximum von $|F_\pi|^2$ zu größeren $|x|$, was eventuell eine bessere

Resonanz zeigen (vermehrt um den Faktor $|F_\pi(x_{\max})|^2 \approx 13,4$ gegenüber der Rechnung mit punktförmigem π -Meson). Für noch kleinere x fällt $|F_\pi|^2$ ziemlich rasch ab, da die Halbwertsbreite nur etwa $7m_\pi^2$ beträgt. Asymptotisch verhält sich $|F_\pi|^2$ wie $1/x$, wie man aus (12) erkennt.

Übereinstimmung mit der π - N -Streuung ergeben könnte (vgl. Abschnitt 6), so wird $G_e^V(0)$ unvernünftig groß gegenüber dem durch die Erfahrung geforderten Wert $e/2$. Zwar ist bei G_e^V aus den oben erörterten Gründen keine so gute Übereinstimmung wie bei G_m^V zu erwarten, doch sollte immerhin die Größenordnung stimmen. Die Variation von x_{\max} und $|F_\pi(x_{\max})|^2$ mit der Streulänge a_1 und der effektiven Reichweite r_1 ist ebenfalls in der Tabelle angegeben.

Für $x > 0$, d. h. im Gebiet raumartiger Energie-Impuls-Übertragungen fällt $F_\pi^2(x)$ monoton ab, wie man aus Fig. 8 ersieht. Der mittlere quadratische Radius \bar{r}_π^2 berechnet sich leicht nach (26) aus (11)

$$\bar{r}_\pi^2 = - \frac{6}{m_\pi^2} \left. \frac{d F_\pi(x)}{d x} \right|_{x=0} \quad (32)$$

wobei

$$\left. \frac{d F_\pi(x)}{d x} \right|_{x=0} = \frac{1}{8(1 + \sqrt{1 - \alpha_1})} - \frac{1 + a}{4(1 + 2a + a^2 + b^2)}. \quad (33)$$

Mit (24a) erhält man daraus

$$\bar{r}_\pi^2 = \frac{0,349}{m_\pi^2} = (0,82 \cdot 10^{-13} \text{ cm})^2. \quad (34)$$

Der ziemlich große Wert von \bar{r}_π^2 zeigt deutlich den Einfluß der direkten π - π -Wechselwirkung. Nimmt man nur eine π - π -Wechselwirkung über virtuelle N - \bar{N} -Paare an, so wird \bar{r}_π^2 etwa von der Größe der doppelten Nukleon-Compton-Wellenlänge¹⁸. Das π -Meson hat danach also eine ziemlich ausgedehnte Struktur, die durch die direkte π - π -Wechselwirkung bedingt ist. Daneben gibt es natürlich noch die kurzreichende Wechselwirkung über virtuelle N - \bar{N} -Paare. Bildlich gesprochen ist das π -Meson also ähnlich aufgebaut wie das Nukleon (jedoch aus anderen Gründen), nämlich aus einer ziemlich ausgedehnten Wolke virtueller π -Mesonen und einem inneren Kern virtueller Nukleon-Antinukleon-Paare.

5. Gültigkeitsgrenzen

Die Gültigkeitsgrenzen der vorstehenden Behandlung sind nicht leicht zu überblicken. Zunächst haben wir bei den Formfaktoren der Nukleonen den Einfluß der isoskalaren Beiträge nicht untersucht, sondern einfach $G_e^S(s) \approx G_e^V(s)$ und $G_m^S(s) \approx 0$ gesetzt. Nur so war ein Vergleich mit der hauptsächlich auf das Proton beschränkten Erfahrung gemäß (17), (28), (30) und (31) überhaupt möglich. Aber auch die Isektoranteile der Formfaktoren sind nur unter erheblichen Vernachlässigungen berechnet worden. So wurden bei der Integration über die Massen der Zwischenzustände in der Dispersionsbeziehung (18) alle Beiträge von Zuständen größerer Masse außer dem 2π -Beitrag (Fig. 2) weggelassen.

¹⁸ BERTOCCHI, L., e H. MINGUZZI: Nuovo Cim. **8**, 783 (1958).

Diese Näherung wurde auch bei der Berechnung des Formfaktors des π -Mesons gemacht (der in Strenge ein Vektor im Isospinraum ist). Die Zulässigkeit dieser Approximation haben wir immer damit begründet, daß wir uns aus experimentellen Gründen nur für das Gebiet relativ kleiner Energie-Impuls-Übertragungen interessieren (gegen M^2). Aus der Gestalt der Dispersionsbeziehungen und wegen der unteren Integrationsgrenze ist es dann plausibel, daß der Zustand kleinster Masse den größten Beitrag liefert. Mit Hilfe der Unitaritätsbedingung läßt sich dieses Argument für nicht zu große Energie-Impuls-Übertragungen noch verschärfen². In Strenge besteht aber ein gekoppeltes System von Dispersionsbeziehungen, wie man sieht, wenn man noch einen Zustand

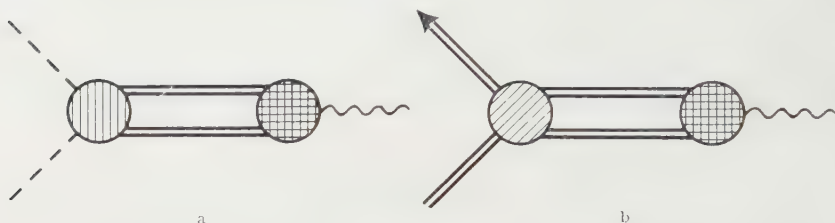


Fig. 9. a 2-Nukleonen-Beitrag zum Formfaktor des π -Mesons, b 2-Nukleonen-Beitrag zu den Nukleon-Formfaktoren

größerer Masse dazunimmt, z.B. den Zwei-Nukleonen-Zustand. Zu den Diagrammen Fig. 2 für F_π und Fig. 5 für G_e und G_m erhält man dann noch die Diagramme Fig. 9a und b, wobei in den Dispersionsbeziehungen über alle q^2 zu integrieren ist, so daß nicht nur die kleinen Energie-Impuls-Übertragungen beitragen. BAKER und ZACHARIASEN¹⁹ haben die resultierenden gekoppelten Integralgleichungen, die man erhält, wenn man die Amplituden $\langle N\bar{N} | 2\pi \rangle$, $\langle \pi\pi | \pi\pi \rangle$ und $\langle N\bar{N} | N\bar{N} \rangle$ als bekannt annimmt, unter sehr vereinfachenden Idealisierungen gelöst. Dabei zeigte sich, daß der Unterschied zwischen den Lösungen des gekoppelten Systems und den Formfaktoren, wenn man nur den Zustand kleinster Masse benutzt, selbst für Energie-Impuls-Übertragungen in der Größenordnung von M^2 und darüber recht klein ist. Sogar bei Anwendung auf zwei Zustände, deren Massen sich nur um den Faktor 2 unterscheiden (wie etwa der 2π - und der 4π -Mesonen-Zustand), war der Unterschied in der Gegend von $s = -q^2/m_\pi^2 = 100$ kaum mehr als 30%. Zwar sind die Idealisierungen bei BAKER und ZACHARIASEN zu groß, um daraus für unsere Verhältnisse quantitative Schlüsse zu ziehen; jedoch erscheint es deshalb sehr wahrscheinlich, daß bei unseren wesentlich kleineren Energie-Impuls-Übertragungen die Benutzung der 2π -Mesonen-Näherung allein keinen größeren Fehler einführt, als es die Beschränkung auf die Behandlung der isovektoriellen Beiträge sowieso schon tut.

¹⁹ BAKER, M., and F. ZACHARIASEN: Phys. Rev. **119**, 438 (1960).

Auch bei der Berechnung des 2π -Beitrages haben wir noch Vereinfachungen vorgenommen. So bestimmten wir die Phase der π - π -Streuung mit einer effective-range-Approximation, die eine Entwicklung nach Potenzen des Schwerpunktsimpulses k^2 darstellt, bei der nach dem Glied mit k^2 abgebrochen wird. Da das Maximum von $|F_\pi(x)|^2$ etwa bei $x \approx -12$ liegt, folgt nach (7) $k_{\max}^2 \approx 2$. Für größere k^2 fällt $|F_\pi|^2$ wieder ziemlich schnell ab, wie wir bereits früher besprochen haben. Die effektive Reichweiten-Entwicklung (5b) wird also unter Berücksichtigung des negativen Vorzeichens von r_1 für die wesentlichen k^2 noch ganz gut sein. Auch die $\langle \pi\pi | N\bar{N} \rangle$ -Amplitude wurde mit Störungsrechnung bestimmt, d.h. wir haben nur den Einnukleonenpol berücksichtigt. Wie wir bereits besprochen haben, wird der dadurch hervorgerufene Fehler in dem interessierenden Bereich wahrscheinlich höchstens 10% betragen, während sein Einfluß auf den Vektoranteil der Ladung $G_e^V(0)$ größer ist. Aber abgesehen von dieser Größe wird man insgesamt etwa erwarten können, daß die Isektoranteile der Formfaktoren des Nukleons und des π -Mesons bis etwa $s = -q^2/m_\pi^2 \approx 20$ bis 25 innerhalb von etwa 10 bis 20% richtig wiedergegeben werden.

Dagegen ist theoretisch nichts bekannt über das Verhalten der isoskalaren Beiträge, also auch nichts über den durch die Annahme $G_e^S(s) \approx G_e^V(s)$ und $G_m^S(s) \approx 0$ eingeführten Fehler. Die Experimente deuten aber darauf hin, daß bis etwa $s = -q^2/m_\pi^2 \approx 20$ dadurch kein wesentlicher Fehler verursacht wird⁴. Aus Messungen über die (niederenergetische) Neutron-Elektron-Wechselwirkung¹⁶ kann man entnehmen, daß $\overline{r_{e,n}^2}$ sehr klein ist im Vergleich zu $\overline{r_{e,p}^2}$ und wahrscheinlich negativ, d.h. F_e^n steigt von null aus langsam an. Damit folgt aus (27)

$$\overline{r_{e,S}^2} \lesssim \overline{r_{e,V}^2}. \quad (35)$$

$\overline{r_{e,S}^2}$ scheint also etwas kleiner zu sein als $\overline{r_{e,V}^2}$. Also wird

$$F_e^p(s) = \frac{G_e^S(s) + G_e^V(s)}{G_e^S(0) + G_e^V(0)} = \frac{1}{2} F_e^S(s) + \frac{1}{2} F_e^V(s) \quad (36)$$

etwas weniger stark abfallen als F_e^V für kleine s . Es ist wahrscheinlich, daß sich dieser Zug bei größeren s verstärkt, da dann der Einfluß von F_e^S bedeutender wird (um so mehr, als die Masse des leichtesten isoskalaren Beitrags mit $3m_\pi$ kleiner ist als diejenige aller vernachlässigten Beiträge zum Isektoranteil). Dieses allgemeine Verhalten ist mit den neuen Experimenten von HOFSTADTER, BUMILLER und CROISSIAUX¹ im Einklang, die ab $s = -q^2/m_\pi^2 = 23$ keinen weiteren Abfall von F_e^p mehr finden. In demselben Maße müßte dann auch der elektrische Formfaktor des Neutrons F_e^n merklich von null verschieden werden. — Beim Formfaktor

des anomalen magnetischen Moments ist dagegen nach den Experimenten $G_m^S(0) = -0,06\mu_K$ sehr klein gegen $G_m^V(0)$ und negativ. Da für das Proton $G_m^p = G_m^S + G_m^V$ gilt, wird G_m^p gegenüber G_m^V zunächst etwas vermindert. Ebenso wie beim elektrischen Formfaktor ist anzunehmen, daß dieser Einfluß bei größeren s bedeutender wird, so daß dann G_m^p stärker abfallen müßte. Diese Erwartung ist ebenfalls mit den neuen Experimenten aus Stanford¹ im Einklang; dort wurde festgestellt, daß G_m^p für $s = -q^2/m_\pi^2 = 42,3$ praktisch auf null abgesunken ist. Da beim Neutron $G_m^n = G_m^S - G_m^V$ gilt, sollte dort der Formfaktor des anomalen magnetischen Moments G_m^n im Bereich $s = -q^2/m_\pi^2 > 23$ weniger stark abfallen als beim Proton.

6. π - π -Wechselwirkung und weitere Erfahrung

Beim obigen Vergleich mit der Erfahrung spielt der Formfaktor des π -Mesons eine entscheidende Rolle. Er wird in der betrachteten Näherung durch die Phase der π -Meson- π -Meson-Streuung im Zustand $L = T = 1$ festgelegt, d.h. für die hier betrachtete Theorie der Struktur der Nukleonen und π -Mesonen ist die π -Meson- π -Meson-Wechselwirkung wesentlich. Wir haben dabei nicht nur eine π - π -Wechselwirkung über Nukleon-Antinukleon-Paare berücksichtigt, sondern auch eine direkte π - π -Wechselwirkung ins Auge gefaßt, die, wie wir sehen, dem π -Meson eine ziemlich ausgedehnte Struktur verleiht. Wir wollen nun besprechen, wieweit eine solche direkte Wechselwirkung auch schon bei anderen Prozessen festgestellt worden ist.

Zu dem Zwecke berechnen wir zunächst die $\pi^+\pi^-$ -Streuung aus der Phase (5b), wobei wir nur eine Streuung im Zustand $L = T = 1$ berücksichtigen. Natürlich kann die π - π -Streuung auch über andere Zustände stattfinden, die mit der Amplitude für $L = T = 1$ interferieren. Da aber im Zustand $L = T = 1$ eine starke Resonanz vorliegt, wird dieser Zustand in der Umgebung der Resonanz am wesentlichsten sein. Dabei ist vorausgesetzt, daß die π - π -Wechselwirkung in einem anderen Zustand nicht ebenfalls eine Resonanz in derselben Gegend besitzt, die mit der Streuung im Zustand $L = T = 1$ destruktiv interferiert (vgl. hierfür das Ende dieses Abschnitts).

Der totale Wirkungsquerschnitt für die Streuung im Zustand L ist bekanntlich durch

$$\sigma_L = 4\pi(2L+1) \frac{\sin^2 \delta_L}{k^2} = \frac{4\pi(2L+1)}{k^2} \frac{1}{1 + \cot^2 \delta_L} \quad (37)$$

gegeben. Also für $L=1$ unter Benutzung von (5b) und $a'_1 = a_1 m_\pi$, $r'_1 = r_1 m_\pi$

$$\sigma_1^{\pi-\pi} = \frac{12\pi}{m_\pi^2} \frac{1}{1 + \left(\frac{r_1'^2 \kappa^4}{\alpha_1'^3} + r_1'^2 \kappa^6 \right)^2}, \quad (38)$$

wobei κ wie in (7) den Schwerpunktsimpuls bezogen auf m_π bedeutet. In Fig. 10 haben wir $\sigma_1^{\pi^+\pi^-}$ bei Benutzung von (24) als Funktion von κ^2 aufgetragen. Man sieht, daß der Wirkungsquerschnitt in der Nähe von $\kappa^2 = k^2/m_\pi^2 \approx 2,4$ eine starke Resonanz besitzt und anschließend monoton abfällt (asymptotisch wie $1/\kappa^2$).

Direkte Messungen der π - π -Streuung sind natürlich nicht möglich. Man kann aber nach einem Vorschlag von CHEW und LOW²⁰ den Streuquerschnitt an reellen Teilchen aus der Streuung an den entsprechenden virtuellen Teilchen extrapolieren, also die π - π -Streuung aus der π -Meso-

nen-Erzeugung durch π -Mesonen $\pi + N \rightarrow N' + \pi + \pi'$. Der Extrapolationsvorgang erfordert jedoch sehr hohe Genauigkeiten der experimentellen Ausgangsdaten. Es sind deshalb bisher nur größenordnungsmäßige Bestimmungen von Mittelwerten möglich gewesen²¹. Dabei ergibt sich $\bar{\sigma}_{\pi\pi} \approx 2$ bis $3 \cdot 10^{-26} \text{ cm}^2$ mit einem Unsicherheitsfaktor bis zu 10. Nach

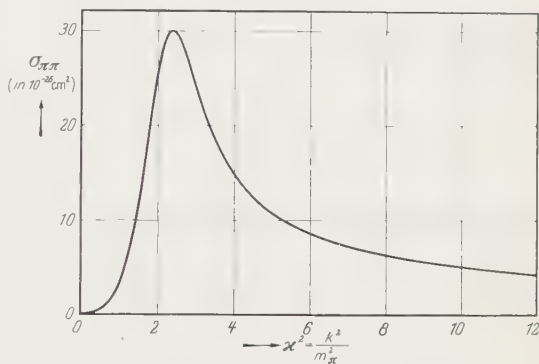


Fig. 10. Totaler Wirkungsquerschnitt für die Streuung eines π^+ -Mesons an einem π^- -Meson als Funktion des Schwerpunktsimpulses, wobei nur die Streuung im Zustand $L = T = 1$ berücksichtigt wurde

Fig. 10 ist unser Mittelwert über den betrachteten Bereich etwa $6 \cdot 10^{-26} \text{ cm}^2$. In einer weiteren Arbeit²² wird $\sigma_{\pi\pi}$ bei sehr hoher Energie bestimmt. Man erhält $\sigma_{\pi\pi} \approx 1,5$ bis $3 \cdot 10^{-26} \text{ cm}^2$ bei $\kappa^2 = k^2/m_\pi^2 \approx 25$. Aus (38) bekommt man dafür $\sigma_{\pi\pi} = 2,4 \cdot 10^{-26} \text{ cm}^2$, was gerade innerhalb des experimentellen Intervalles liegt. Unsere Berechnung ist also mit dem gegenwärtig vorhandenen (noch sehr spärlichen) Erfahrungsmaterial verträglich. Mehr läßt sich erst aussagen, wenn erheblich genauere Messungen vorliegen.

Verschiedentlich wird die Masse des π - π -Resonanzzustandes abgeschätzt^{21, 23}, die Übereinstimmung mit den experimentellen Daten liefert. Man erhält dabei Werte zwischen 3 und $5 m_\pi$, was mit unserem

²⁰ CHEW, G.F., and F.E. LOW: Phys. Rev. **113**, 1640 (1959).

²¹ BONSIGNORI, F., e F. SELLERI: Nuovo Cim. **15**, 465 (1960). — DERADO, J.: Nuovo Cim. **15**, 853 (1960). — BONSIGNORI, F., V. BORTOLANI e A. STANGHELLINI: Nuovo Cim. **18**, 1237 (1960).

²² BLOKHINTSEV, D. J., u. W. YUNG: Nuclear Phys. **22**, 410 (1961).

²³ ABASHIAN, A., N.E. BOOTH and K.M. CROWE: Phys. Rev. Letters **5**, 258 (1960). — FRIEDLÄNDER, E.M., M. MARCU e M. SPIRCHÉZ: Nuovo Cim. **18**, 623 (1960).

Wert ebenfalls gut verträglich ist. Aus den vorhandenen spärlichen und ungenauen Daten können jedoch noch keine definitiven Schlüsse für eine Resonanz der π - π -Wechselwirkung im Zustand $L = T = 1$ im Gegensatz zu einem konstanten $\sigma_{\pi\pi}$ gezogen werden²⁴.

Auch die statistische Theorie der Proton-Antiproton-Vernichtung stimmt befriedigend mit den (ebenfalls noch recht ungenauen) Experimenten überein, wenn man eine starke Resonanz bei der π - π -Wechselwirkung im Zustand $L = T = 1$ und einer Energie $4m_\pi$ annimmt²⁵.

Die π - π -Wechselwirkung hat auch einen wesentlichen Einfluß auf die π -Meson-Nukleon-Streuung. Eine Resonanz im Zustand $L = T = 1$ mit einer Resonanzenergie von etwa $3 \dots 4m_\pi$ scheint hier bei kleiner Energie eine viel zu große $P_{\frac{1}{2}, \frac{1}{2}}$ -Amplitude zu geben, wenn die Größe der Resonanz durch das anomale magnetische Vektormoment bestimmt wird²⁶. Dagegen läßt sich Übereinstimmung mit einer resonanzartigen π - π -Wechselwirkung erreichen, wenn die Resonanzstelle erst bei höherer Energie liegt ($\sim 5m_\pi$) und für das anomale magnetische Moment eine subtrahierte Dispersionsbeziehung benutzt wird²⁷. Aber auch abgesehen davon hat man zu bedenken, daß die π - π -Wechselwirkung in Strenge wahrscheinlich komplizierter ist, als wir es hier zu betrachten brauchten. Für unsere Zwecke genügte es, sich auf den 2π -Zustand zu beschränken und aus den Experimenten zu schließen, daß z. B. $\overline{r_{e,v}^2} \approx \overline{r_{e,s}^2}$ und $G_e^V(s) \approx G_e^S(s)$ für genügend kleine $s = -q^2/m_\pi^2$. Die letzte Tatsache weist darauf hin, daß der 3π -Zustand wahrscheinlich eine Resonanz oder gar einen gebundenen Zustand mit $T=0$ und $L=1$ in derselben Gegend wie der 2π -Zustand besitzt²⁸. Diese Resonanz würde ebenfalls einen wesentlichen Beitrag zur π - N -Streuung liefern. Wir können deshalb auch aus der π - N -Streuung ebenso wie aus den übrigen in diesem Abschnitt besprochenen Experimenten noch keine definitiven Schlüsse für die Existenz einer resonanzartigen π - π -Wechselwirkung im Zustand $L = T = 1$ ziehen, wenngleich die meisten Experimente eine solche Resonanz wahrscheinlich machen.

²⁴ CARRUTHERS, P., and H.A. BETHE: Phys. Rev. Letters **4**, 536 (1960). — RUSHBROOKE, J. G., and D. RADOJICIC: Phys. Rev. Letters **5**, 567 (1960). — MUNIR, B. A., E. PICKUP, D. K. ROBINSON and E. O. SALANT: Phys. Rev. Letters **6**, 192 (1961).

²⁵ CERULUS, F.: Nuovo Cim. **14**, 827 (1959).

²⁶ FRAUTSCHI, S. C.: Phys. Rev. Letters **5**, 159 (1960).

²⁷ BOWCOOK, J., W. N. COTTINGHAM e D. LURIÈ: Nuovo Cim. **16**, 918 (1960); **19**, 142 (1961). — Phys. Rev. Letters **5**, 386 (1960).

²⁸ CHEW, G. F.: Phys. Rev. Letters **4**, 142 (1960).

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Universität Freiburg

Über die Unabhängigkeit der Sommerfeldschen Feinstrukturkonstanten vom Gravitationsfeld

Von

H. DEHNEN, H. HÖNL und K. WESTPFAHL

(Eingegangen am 23. Juni 1961)

Es wird gezeigt, daß sich die Riemannsche Metrik der allgemeinen Relativitätstheorie für rotationsfreie Systeme durch *atomare* Maßstäbe und Uhren realisieren läßt und daß die Sommerfeldsche Feinstrukturkonstante α vom Gravitationsfeld *unabhängig* ist.

Radioastronomische Untersuchungen¹ über die Rotverschiebung der 21 cm-Strahlung der starken Radioquelle Cygnus A lassen vermuten, daß die Sommerfeldsche Feinstrukturkonstante von Raum und Zeit und damit auch vom Gravitationsfeld unabhängig ist. Es soll im folgenden, im Anschluß an eine vorangehende Untersuchung der Verfasser², gezeigt werden, daß die Unabhängigkeit der Feinstrukturkonstanten vom metrischen Feld der allgemeinen Relativitätstheorie (G-Feld) mit der grundsätzlichen Forderung, daß sich dieses durch *atomare* Maßstäbe und Uhren ausmessen lasse, in unmittelbarem Zusammenhang steht. In diesem Sinne ist die erwähnte Unabhängigkeit eine direkte Folge der Riemannschen Metrik des Raum-Zeit-Kontinuums; sie gilt demgemäß für jede metrische Theorie der Gravitation in Strenge, sofern Isotropie des *Raumes* vorausgesetzt werden darf. Nicht-rotationsfreie Systeme (bzw. Kosmos-Modelle) werden hiermit zunächst ausgeschlossen.

Die folgenden Ausführungen ergänzen die a. a. O. gegebenen Darlegungen in einigen wesentlichen Punkten.

1. Voraussetzungen

Zur Bequemlichkeit des Lesers seien hier die in der genannten Arbeit gemachten Annahmen (Axiome) nochmals zusammengestellt:

1a. Gravitation beruht auf der *Metrik* des Raum-Zeit-Kontinuums. Das Linienelement soll (für rotationsfreie Systeme) in der Form

$$ds^2 = g \cdot c^2 dt^2 - f d\sigma^2 \quad (1)$$

¹ LILLEY, A. E., and E. F. McCLAIN: *Astrophys. J.* **123**, 172 (1956); R. MIN-KOWSKI u. O. C. WILSON, ebenda S. 373.

² DEHNEN, H., H. HÖNL u. K. WESTPFAHL: *Ann. Phys.*, **7. F.** **6**, 370 (1960); im folgenden als a. a. O. zitiert.

angesetzt werden, wobei f und g beliebige Raum-Zeitfunktionen sind und das räumliche Linienelement $d\sigma^2$ der Isotropie des Raumes Rechnung trägt.

Diese Annahme ist aber durch das weitere *Postulat* zu ergänzen:

1b. daß Zeitintervalle und räumliche Distanzen prinzipiell durch *atomare* Uhren und Maßstäbe ausgemessen werden können;

2. Gültigkeit des *Äquivalenzprinzips* (Gleichheit der trägen und schweren Masse);

3. die Annahme, daß die *Kopplungskonstante* κ zwischen den geometrischen Krümmungsgrößen ($R_{\mu\nu}$) und dem Energie-Impulstensor ($T_{\mu\nu}$) von den $g_{\mu\nu}$ (G -Feld) unabhängig ist.

A. a. O. wurde gezeigt, daß sich auf Grund dieser Annahmen ein einfacher *heuristischer* Zugang zur Einsteinschen Gravitationstheorie bei *schwachen* Feldern gewinnen läßt (Effekte 1. und 2. Ordnung in $\gamma = -\Phi/c^2$, Φ Newtonsches Potential). Annahme 2 hat bereits EINSTEIN als wichtigster heuristischer Gesichtspunkt bei der Entwicklung der allgemeinen Relativitätstheorie gedient. In gewisser Weise ist diese Voraussetzung ein Ersatz für die Feldgleichungen des Gravitationsfeldes. Die Annahme 3 darf als fast selbstverständlich im Rahmen einer rein metrischen Theorie angesehen werden. Im folgenden soll ausschließlich von der Annahme 1 Gebrauch gemacht werden.

2. Das Verhalten von Maßstäben, Uhren und Massen im Gravitationsfeld

Allein schon auf Grund der Annahme 1a lassen sich streng gültige Aussagen über das Verhalten von Maßstäben, Uhren (Zeitintervallen) und Massen im Gravitationsfeld gewinnen. Wir spezialisieren hierfür das räumliche Linienelement $d\sigma^2$ in die beiden Formen:

$$\text{a) } d\sigma^2 = dx_1^2 + dx_2^2 + dx_3^2, \quad (1a)$$

$$\text{b) } d\sigma^2 = R^2(t) [d\chi^2 + \sin^2\chi (d\vartheta^2 + \sin^2\vartheta d\varphi^2)], \quad (1b)$$

welche beide der Forderung der räumlichen *Isotropie* genügen. Die Annahme a) entspricht mit Rücksicht auf die Gestalt des Linienelements (1) der Anwesenheit von (statischen) Gravitationsfeldern bei (statischer) euklidischer Grundmetrik; entsprechend beschreibt b) die durch lokale Gravitationsfelder „gestörte“ Grundmetrik eines expandierenden Kugelraumes (Friedmann-Lemaîtresche Lösung der Feldgleichungen)*. Eine Voraussetzung über „schwache“ oder „starke“ Gravitationsfelder soll ausdrücklich *nicht* gemacht werden.

* Unser Ansatz (1) gestattet zwischen „Grundmetrik“ und eigentlichem Gravitationsfeld, gekennzeichnet durch die Funktionen f und g , zu unterscheiden. Das G -Feld (Führungsfeld) umfaßt nach der üblichen Definition beides.

Aus der Isotropie von $d\sigma^2$ ergibt sich zunächst, daß das Zustandekommen der durch f modifizierten Grundmetrik so aufgefaßt werden kann, daß ein Maßstab, welcher bei Abwesenheit von Gravitationsfeldern (in hinreichend großer Entfernung von gravitierenden Massen) die Länge l besitzt, im Gravitationsfeld eine (fiktive)* Veränderung seiner Länge gemäß

$$l^* = \frac{l}{\sqrt{f}} \quad (2)$$

erfährt. Ganz ebenso kann der Einfluß der Gravitationsfelder auf die von atomaren Systemen ausgesandten Spektrallinien in dem Sinne beschrieben werden, daß die Schwingungsdauer τ einer Uhr (Atomuhr) eine (fiktive) Änderung entsprechend

$$\tau^* = \frac{\tau}{\sqrt{g}} \quad (3)$$

erfährt. Für die Lichtgeschwindigkeit im Gravitationsfeld ergibt sich aus (2) und (3) oder aus $ds=0$:

$$c^* = \frac{d\sigma}{dt} = \sqrt{\frac{g}{f}} c. \quad (4)$$

Die Veränderung der Ruhmasse m_0 eines Probekörpers im Gravitationsfeld läßt sich andererseits leicht aus dem als Hamilton-Prinzip aufgefaßten Variationsprinzip

$$\delta \int ds = \delta \int L dt = 0 \quad \text{mit} \quad L = -m_0 c \frac{ds}{dt} \quad (5)$$

gemäß der allgemeinen (kanonischen) Impulsdefinition

$$p_k = \frac{\partial L}{\partial \dot{x}^k} \quad (k=1, 2, 3) \quad (5a)$$

ableiten. Wir wollen hierbei die speziellen räumlichen Linienelemente (1a) und (1b) gesondert betrachten:

a) Bei Zugrundelegung des euklidischen Linienelements (1a) wird

$$L = -m_0 c^2 \sqrt{g - f\beta^2} \quad \text{mit} \quad \beta = \frac{v}{c} = \frac{\sqrt{\dot{x}_1^2 + \dot{x}_2^2 + \dot{x}_3^2}}{c}$$

* Die Bezeichnung „fiktive Veränderung“ könnte insofern als nicht ganz passend erscheinen, als sich aus diesen Veränderungen ja tatsächlich beobachtbare Effekte ableiten lassen. Es soll damit nur der Gegensatz zu den „natürlich gemessenen“ Größen betont werden, womit Messungen „am gleichen Ort“ und „zu gleicher Zeit“ (hic et nunc) gemeint sind. Solche Messungen stellen für die klassische Physik kein grundsätzliches Problem dar (im Gegensatz zur Quantentheorie). Gemäß der Vorstellung fiktiver Veränderungen der Eichmaße (Längen- und Zeitnormal, Ruhmasse usw.) werden die Gravitationseffekte im Sinne eines bestimmten „Modells“ gedeutet, siehe hierzu a. a. O.

und hieraus nach einfacher Rechnung mit Rücksicht auf (5a) und (4)

$$p_k = m^* \dot{x}_k, \quad m^* = \frac{m_0^*}{\sqrt{1 - \beta^{*2}}}, \quad \beta^* = \frac{v}{c^*} \quad (6)$$

und

$$m_0^* = \frac{f}{\sqrt{g}} m_0. \quad (6')$$

In (6') kommt die (fiktive) Änderung m_0^* der Ruhmasse m_0 des Probekörpers im Gravitationsfeld zum Ausdruck, in (6) außerdem noch der Einfluß der Geschwindigkeit auf die bewegte Masse m^* *.

b) Die entsprechende Überlegung führt im Falle des expandierenden Kugelraumes gemäß (1b) zunächst auf

$$L = - m_0 c^2 \sqrt{g - f \left(\frac{d\sigma}{c dt} \right)^2},$$

worin wir (wegen der vorausgesetzten Isotropie) ohne Minderung der Allgemeinheit $d\sigma = R(t) d\chi$, $d\vartheta = d\varphi = 0$ setzen dürfen. Daher wird der „kanonische“ Impuls

$$p_\chi = \frac{\partial L}{\partial \dot{\chi}} = m_0 \frac{f R^2 \dot{\chi}}{\sqrt{g - f \dot{\chi}^2}} = m_0 \frac{f R}{\sqrt{g - f \dot{\chi}^2}} \cdot v_\chi,$$

wenn $v_\chi = R \dot{\chi}$ die (beobachtbare) Geschwindigkeit der Masse (relativ zum ruhend angenommenen Substrat) und $\beta = v_\chi/c$ bedeutet. Für $\beta = 0$ wird

$$p_\chi = m_0 \frac{f}{\sqrt{g}} R v_\chi, \quad (7a)$$

für $f = g = 1$ dagegen

$$p_\chi = \frac{m_0 v_\chi}{\sqrt{1 - \beta^2}} \cdot R = \text{const.} \quad (7b)$$

(7b) zeigt, daß wir den „mechanischen“ Impuls p durch p_χ/R zu definieren haben; es gilt also für $f = g = 1$: $pR = \text{const.}$ ³. Der Vergleich von (7a) und (7b) läßt demnach erkennen, daß die Ruhmasse im Gravitationsfeld gemäß

$$m_0^* = \frac{f}{\sqrt{g}} m_0$$

modifiziert wird, also in genauer Übereinstimmung mit (6').

* An den Ausdrücken (6) und (6') für die Massenveränderung im Gravitationsfeld wird besonders deutlich, daß man den Gravitationseinfluß und den Geschwindigkeitseinfluß auf das Massennormal (Ruhmasse m_0) grundsätzlich gleichartig zu bewerten hat. Es wird einmal die Trägheit von Massen an zwei verschiedenen Stellen des Koordinatenraumes (x_i), das andere Mal an zwei Stellen des Geschwindigkeitsraumes (\dot{x}_i) untereinander in Beziehung gesetzt (für $\beta = 0$ und $\beta \neq 0$). Es bedeutet daher einen sachlich belanglosen Unterschied, ob man die Massenveränderung als „fiktiv“ oder „effektiv“ bezeichnen will. Siehe auch die vorangehende Fußnote.

³ HÖNL, H.: Ann. Phys., 6. F. 6, 169 (1949).

Bei dieser Überlegung war die vorausgesetzte Isotropie von $d\sigma^2$ von ausschlaggebender Bedeutung. Man übersieht leicht, daß (6') auch für einen expandierenden euklidischen oder hyperbolischen Raum Gültigkeit besitzt*.

3. Das Verhalten von h , e und α im Gravitationsfeld

Unser weiteres Ziel ist: nachzuweisen, daß sich nunmehr aus unserem Postulat (1b) notwendig ergibt, daß sowohl die *Plancksche Konstante* h als auch die *Feinstrukturkonstante* $\alpha = e^2/\hbar c$ vom *Gravitationsfeld* gänzlich *unabhängig* ist.

a) *Plancksches Wirkungsquantum* h . Die Unabhängigkeit von h vom Gravitationsfeld ergibt sich sofort aus dem Ausdruck für die Compton-Wellenlänge $\Lambda = \hbar/m_0 c$. Da nach (2), (4) und (6') das Produkt $\Lambda^* m_0^* c^* = \Lambda m_0 c$ ist (die Funktionen f und g fallen in diesem Produkt vollständig heraus), so muß $\hbar^* = \hbar$ sein**.

* Es möge noch darauf hingewiesen werden, daß das Linienelement für den expandierenden Friedmann-Kosmos mit *konstanter* positiver Krümmung (Kugelraum)

$$ds^2 = c^2 dt^2 - R^2(t) [d\chi^2 + \sin^2\chi (d\vartheta^2 + \sin^2\vartheta d\varphi^2)]$$

aus dem Linienelement (1), (1a):

$$ds^2 = g \cdot c^2 dt^2 - f(d\chi_1^2 + d\chi_2^2 + d\chi_3^2)$$

vermöge der Substitution

$$x_1 = r \sin \vartheta \cos \varphi, \quad x_2 = r \sin \vartheta \sin \varphi, \quad x_3 = r \cos \vartheta$$

mit

$$r = 2a \frac{1 \pm \cos \chi}{\sin \chi}$$

(a konstante Länge) hervorgeht, wenn man

$$f = \frac{R^2(t)/a^2}{[1 + (r/2a)^2]^2}, \quad g = 1$$

setzt. Beschränken wir uns auf die Umgebung der Stelle $r = 0$ ($\chi = 0$ bzw. $\chi = \pi$), so wird näherungsweise $f = R^2/a^2$. Hieraus ergibt sich nach (2), (3) und (4)

$$l^* = l \frac{a}{R}, \quad \tau^* = \tau, \quad c^* = c \frac{a}{R}.$$

Hiernach kommt die Expansion des Universums durch eine fiktive „Schrumpfung“ der elementaren Maßstäbe (Atome) und der Lichtgeschwindigkeit (bei Erhaltung des Zeitablaufes) zustande. Diese Auffassung ist zwar in sich konsequent, aber für physikalische Diskussionen sicher nicht zweckmäßig. Es ist viel natürlicher, die Expansion des Universums durch eine geeignete Grundmetrik zu beschreiben, wie wir es im Text getan haben.

** Die Invarianz $\hbar^* = \hbar$ wurde (neben $\kappa^* = \kappa$, Annahme 3) bei der heuristischen Begründung der Einsteinschen Gravitationstheorie a. a. O. als wesentliches Fundament benutzt; sie ergibt sich hier als eine notwendige Folge von 1a und 1b.

Die Möglichkeit, den Drehimpuls J entsprechend $J = j\hbar$ zu quantisieren, beruht auf dem dimensionell gleichartigen Verhalten von J und \hbar . Hieraus folgt unmittelbar, daß ein quantenmechanisches System mit quantisiertem Drehimpuls auch dann noch quantisiert bleibt, wenn man es (adiabatisch) von einem Ort im G -Feld nach einem anderen Orte bewegt. Der Erhaltungssatz für den Drehimpuls selbst folgt andererseits, wie bekannt⁴, allein schon aus der Isotropie des Raumes.

b) *Elementarladung e* . Das Verhalten von e ergibt sich sehr einfach aus dem Elektronenradius^{*} $a_e = e^2/m_0 c^2$. Es folgt hieraus, daß sich e^2 wie $(a_e m_0 c) \cdot c$, d.h. wie c verhalten muß. Somit wird nach (4):

$$e^{*2} = \frac{c^*}{c} e^2 = \sqrt{\frac{g}{f}} e^2. \quad (8)$$

Mit Rücksicht auf (6), (6') läßt sich hiernach auch das Verhalten der spezifischen Ladung angeben. Es ergibt sich

$$\left(\frac{e}{m}\right)^* = \left(\frac{\sqrt{g}}{f}\right)^{\frac{3}{2}} \sqrt{1 - \beta^{*2}} \cdot \frac{e}{m_0}. \quad (8a)$$

Hierin sind insbesondere die Fälle $\beta = 0$ und $f = g = 1$ als Sonderfälle enthalten.

c) *Feinstrukturkonstante α* . Schließlich ist zu prüfen, ob sich $\alpha = e^2/\hbar c$ als unabhängig vom Gravitationsfeld ergibt. Dies ist in der Tat der Fall, da sich \hbar als unabhängig vom G -Feld erweist und sich nach (8) e^2 gerade wie c verhält. Daher ist $\alpha^* = \alpha$ **.

Dieses Ergebnis ist von *prinzipieller* Bedeutung, da es die empirische Grundlage für die widerspruchsfreie Realisierung einer Metrik mittels Elementaruhren und elementaren (atomaren) Maßstäben bildet. Wäre nämlich α vom G -Feld abhängig, so wäre auch die Metrik davon abhängig, *welche speziellen* Maßstäbe und Uhren zur Ausmessung des metrischen Feldes benutzt werden. Damit entfielen aber der Begriff

* Es ist zu beachten, daß der Elektronenradius a_e durch den physikalisch meßbaren Streuquerschnitt für die Streuung von Photonen an Elektronen (unabhängig von jeder modellmäßigen Vorstellung) definiert werden kann. Die Wahl des Elektronenradius ist im übrigen willkürlich. Dasselbe Resultat wie im Text ergibt sich aus jeder universellen Konstanten (z. B. der Rydberg-Frequenz $R = 2\pi^2 m_0 e^4/\hbar^3$), in welcher e^2 neben Potenzen von c , \hbar und m_0 auftritt.

** Daß α auch von der Grundmetrik unabhängig ist, also auch von der Expansion des Universums, folgt bei unserer Überlegung einfach daraus, daß in diesem Falle $f = g = 1$ zu setzen ist, d.h. Maßstäbe, Uhren und Massen räumlich und zeitlich konstant sind.

⁴ NOETHER, E.: Invariante Variationsprobleme, Göttinger Nachrichten 1918, S. 235 ff.

einer *universalen* Metrik, wie er die Grundlage der allgemeinen Relativitätstheorie bildet*. Erst damit ist der Beweis der inneren *Widerspruchsfreiheit* unserer Voraussetzungen erbracht.

Nach unseren Darlegungen kann der Zahlenwert der Feinstrukturkonstanten weder durch die Expansion des Universums noch durch lokale (statische) Gravitationsfelder beeinflusst werden. Hieraus folgt, daß eine extragalaktische optische Lichtquelle und eine gleichartig bewegte Radioquelle bei gleicher Entfernung *dieselbe* relative Rotverschiebung zeigen muß, da das Verhältnis der von den Quellen emittierten Wellenlängen allein durch die Feinstrukturkonstante bestimmt ist (Rydberg-Frequenz: Hyperfeinstrukturfrequenz $\simeq 1:\alpha^2$). Dieses theoretische Ergebnis kann durch Untersuchung der Rotverschiebung extragalaktischer Radioquellen mit großer Genauigkeit geprüft werden**.

* Siehe hierzu a. a. O., insbesondere Abschnitt 2.

** Die Beobachtungen ergeben (s. Fußnote 1 auf S. 483), daß innerhalb $700 \cdot 10^6$ Jahren keine merkliche Veränderung der Feinstrukturkonstanten stattgefunden haben kann. Man vergleiche hierzu jedoch die Kritik von R.D. DAVIES und R.C. JENISSON [Nature, Lond. **184**, 803 (1959)], wonach A.E. LILLEY und E.F. McCLAIN ihre Meßgenauigkeit überschätzt haben. Nicht zu beseitigende Unterschiede der relativen Wellenlängenänderung können ihren Ursprung in reellen Geschwindigkeitsdifferenzen der Quellen (von einigen hundert km/sec) haben, die zu einem zusätzlichen Doppler-Effekt Anlaß geben.

Aus dem Werkstoffinstitut der Kernforschungsanlage Jülich

Die elastische Instabilität einer rein-harmonischen Kristalltheorie

Von

WOLFGANG LUDWIG*

(Eingegangen am 18. Juli 1961)

It is shown, that, because of the rotational invariance of the potential energy, a purely-harmonic theory leads to an elastically isotropic, but unstable crystal.

In einer früheren Arbeit¹ (im folgenden mit I bezeichnet) wurden aus der Invarianz der potentiellen Energie eines Kristalls gegenüber Drehungen gewisse Bedingungen für die Kopplungsparameter (K.P.) hergeleitet. Mit Hilfe dieser Rotationsbedingungen soll gezeigt werden, daß das Vorhandensein anharmonischer Terme (K.P. 3. Ordnung und höhere) für die elastische Stabilität von Kristallen notwendig ist.

Die K.P. sind durch Entwicklung der potentiellen Energie nach kleinen Auslenkungen q_i^m aus mittleren Lagen \mathfrak{R}^m definiert**:

$$\Phi = \Phi_0 + \sum_m \Phi_i^m q_i^m + \frac{1}{2} \sum_{m,n} \Phi_{ij}^{mn} q_i^m q_j^n + \frac{1}{3} \sum_{m,n,p} \Phi_{ijk}^{mnp} q_i^m q_j^n q_k^p + \dots \quad (1)$$

Die Rotationsbedingungen verknüpfen die K.P. ν -ter Ordnung mit denen $(\nu+1)$ -ter Ordnung und besagen für $\nu=0, 1, 2$, daß die Größen

$$\sum_m \Phi_i^m X_k^m, \quad \sum_m \Phi_{ij}^{mn} X_k^m + \Phi_i^n \delta_{jk}; \quad (2a, b)$$

$$\sum_m \Phi_{ijk}^{mnp} X_k^m + \Phi_{ij}^{np} \delta_{kl} + \Phi_{il}^{np} \delta_{jk} \quad (2c)$$

symmetrisch in i und k sein müssen. Aus diesen Bedingungen lassen sich für endliche Kristalle die sog. Kun-Huang-Bedingungen² ableiten, für unendliche Kristalle folgen sie daraus durch Extrapolation (I. 4. 11 b).

Für eine *rein-harmonische* Theorie (alle K.P. 3. Ordnung Φ_{ijk}^{mnp} und höhere verschwinden) folgt nun aus (2c)

$$\Phi_{ji}^{np} \delta_{kl} + \Phi_{il}^{np} \delta_{jk} = \Phi_{jk}^{np} \delta_{il} + \Phi_{kl}^{np} \delta_{ij}. \quad (3)$$

* Adresse: Aachen, Muffeter Weg 3.

** Für Abkürzungen und Symbole vgl. man I.

¹ LEIBFRIED, G., u. W. LUDWIG: Z. Physik **160**, 80 (1960). Zu denselben Ergebnissen kommt L. T. HEDIN: Arkiv Fysik **18**, 369 (1960).

² HUANG, K.: Proc. Roy. Soc. Lond. A **203**, 178 (1950).

Diese Beziehung läßt sich nur mit

$$\Phi_{ij}^{mn} = \varphi^{mn} \delta_{ij} \quad (4)$$

erfüllen. Der Kun-Huang-Tensor (I. 4. 10) wird damit

$$\hat{C}_{ij,kl} = -\frac{1}{2V_z} \sum_b \varphi^{0b} X_k^b X_l^b \delta_{ij} = \varrho_{kl} \delta_{ij}. \quad (5)$$

Die Kun-Huang-Bedingung² (I. 4. 11 b) lautet dann mit den Spannungen (I. 4. 7) $C_{kl} = \frac{1}{V} \sum_m \Phi_k^m X_l^m$

$$(\varrho_{kl} - C_{kl}) \delta_{ij} = (\varrho_{ij} - C_{ij}) \delta_{kl}, \quad (6)$$

was wiederum nur für

$$\varrho_{kl} - C_{kl} = \alpha \delta_{kl} \quad (7)$$

erfüllt ist.

Für die elastischen Konstanten (I. 3. 8 a) resultiert

$$C_{ikh,jl} = \alpha (\delta_{ij} \delta_{kl} + \delta_{kj} \delta_{il} - \delta_{ik} \delta_{jl}), \quad (8a)$$

oder speziell in der Voigtschen Indizierung ($ik = 11, 22, 33, 23, 31, 12 \rightarrow \alpha = 1, 2, 3, 4, 5, 6$)

$$\left. \begin{aligned} c_{11} &= c_{22} = c_{33} = \alpha, \\ c_{12} &= c_{23} = c_{31} = -\alpha, \\ c_{44} &= c_{55} = c_{66} = \alpha, \\ \text{alle anderen } c_{\alpha\beta} &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (8b)$$

Diese Beziehungen besagen elastische Isotropie mit dem Schubmodul

$$c_{44} = \frac{1}{2} (c_{11} - c_{12}) = \alpha \quad (9a)$$

und dem Kompressionsmodul

$$K = \frac{1}{3} (c_{11} + 2c_{12}) = -\frac{1}{3} \alpha. \quad (9b)$$

(Die Laméschen Konstanten sind $\lambda = -\alpha$, $\mu = \alpha$.) Gln. (9) bedeuten jedoch elastische Instabilität, da entweder

$$\text{oder} \quad \left. \begin{aligned} c_{44} &< 0 \quad \text{und} \quad K > 0 \\ c_{44} &> 0 \quad \text{und} \quad K < 0 \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

ist. Die Stabilitätsbedingung³ für ein elastisches Medium verlangt aber, daß $c_{44} > 0$ und $K > 0$ sind.

³ BORN, M.: Proc. Cambridge Phil. Soc. **36**, 160 (1940).

Ein *rein-harmonisches* Modell liefert also einen *elastisch-isotropen*, aber *instabilen* Kristall. Für die elastische Stabilität sind anharmonische Terme in der potentiellen Energie (1) notwendig.

Hiernach sieht es zunächst so aus, als ob die übliche harmonische Theorie nicht brauchbar wäre. Das ist jedoch nicht der Fall. Man kann in guter Näherung die Rotationsbedingung (2c) vernachlässigen, wenn man eine harmonische Theorie aufbaut, denn die durch (2c) geforderte „notwendige“ Anharmonizität liefert Effekte, die fast immer um eine Größenordnung kleiner sind als die „echten anharmonischen Effekte“⁴.

Aus der Notwendigkeit anharmonischer Terme läßt sich eine qualitative Aussage über die Größenordnung elastischer Konstanten dritter Ordnung $C_{ik,jl,rs}$ ableiten. Der „notwendige“ Term $\sum_m \Phi_{ijl}^{mnp} X_k^m$ in (2c) muß von der Größenordnung der K.P. 2. Ordnung sein. Hieraus folgt unmittelbar, daß wenigstens eines der $C_{ik,jl,rs}$, die nach (I. 3. 5b) und (I. 3. 8b) aus den K.P. 3. Ordnung berechnet werden können, dem Betrage nach etwa gleich den elastischen Konstanten 2. Ordnung $C_{ik,jl}$ ist. Da die „echte“ Anharmonizität jedoch im allgemeinen um einen Faktor 10 größer ist als die durch die Stabilität geforderte „notwendige“ Anharmonizität (vgl. ⁴), sollten auch wenigstens einige $C_{ik,jl,rs}$ dem Betrage nach größer sein als die $C_{ik,jl}$. Wo Messungen darüber vorliegen, ist das auch erfüllt. Eine Entwicklung der elastischen Energiedichte nach Verzerrungen wie in (I. 5. 4) ist natürlich dann immer noch sinnvoll, wenn nur die Verzerrungen genügend klein sind.

Die vorstehenden Betrachtungen gelten wie in I für parameterfreie Gitter, bei denen sich die Atome als Massenpunkte behandeln lassen. Man darf aber erwarten, daß für nicht-primitive Gitter ähnliche Aussagen möglich sind.

⁴ LEIBFRIED, G., u. W. LUDWIG: Theory of Anharmonic Effects in Crystals. In: Solid State Physics, Bd. 12. S. 275, 1961.

Aus dem Institut für theoretische Physik der Universität Oslo

Zur praktischen Lösung der relativistischen Einelektronengleichung. II*

Von

EGIL A. HYLLERAAS

(Eingegangen am 9. Juni 1961)

Es werden zur Darstellung der radialen Komponenten der Wellenfunktion des Kepler-Problems ausschließlich solche Laguerre-Polynome oder konfluent hypergeometrische Reihen benutzt, die direkt in die nicht-relativistischen Eigenfunktionen übergehen. Die Normierung der Wellenfunktionen geschlossener Zustände wird vollzogen, und die Wellenfunktionen der offenen Zustände werden angegeben. Im kräftefreien Fall werden Lösungen aus einer einkomponentigen Funktion mittels eines Matrizenoperators erzeugt und schließlich werden ebene Wellen in vierkomponentige Kugelwellen umwandelt, die einzeln Lösungen der kräftefreien Wellengleichung sind.

1. Diskrete Zustände im Coulomb-Feld

a) Die Wellengleichung

Um die Schreibweise zu vereinfachen werden öfters eine oder mehrere der größeren e , \hbar , m_0 , c gleich 1 gesetzt. Das wollen wir hier vermeiden. Um das Hinschreiben von \hbar usw. nicht unnötig wiederholen zu müssen, definieren wir aber Impulsoperatoren etwas anders, der Vertauschungsrelation $p q - q p = -i$ entsprechend, so daß die Dimension von p die einer reziproken Länge ist. Die Wellengleichung schreibt sich dann beim Potential $V = -Ze^2/r$

$$\left. \begin{aligned} \left(p_0 + \frac{\alpha Z}{r} - \beta p_4 \right) \psi &= \alpha p \psi, \\ p &= -i \nabla, \quad \hbar c p_4 = m_0 c^2, \quad \hbar c p_0 = E, \quad \alpha = e^2 / \hbar c. \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

Man beachte die Definition von p_4 und p_0 , die bei manchen Autoren die umgekehrte ist, weil $(p, i p_0)$ ja ein Vierervektor ist. Hier ist die Bezeichnung mit Rücksicht auf $\beta = \alpha_4$ so gewählt, daß das letzte Glied in der Energiefunktion $\alpha_4 p_4$ lautet.

* Das Problem ist in einer früheren Abhandlung [E. A. HYLLERAAS, Z. Physik **140**, 626 (1955)] besprochen, doch war damals die Separation der großen und kleinen Komponenten die Hauptsache. Die Abhandlung bedarf auch in verschiedenen Richtungen einer Ergänzung, besonders in der eindeutigen Auswahl von Hilfsfunktionen.

Eine geschmeidigere Form der Gleichung erster Ordnung ist erhältlich, wenn man rechterhand

$$\left. \begin{aligned} \alpha \mathbf{p} &= \alpha_r (r \mathbf{p}_r + i \boldsymbol{\sigma} \mathbf{m}), & \mathbf{m} &= \mathbf{r} \times \mathbf{p}, \\ \alpha_1 \alpha_2 &= i \alpha_3, \text{ usw.}, & \mathbf{p}_r &= -i \frac{\partial}{\partial r}, & \alpha_r &= \hat{\mathbf{r}} \boldsymbol{\alpha}, & \hat{\mathbf{r}} &= \mathbf{r}/r, \end{aligned} \right\} \quad (1a)$$

einführt, doch werden wir von der Gleichung erster Ordnung auch in der Form (1a) wenig Gebrauch machen.

Der Übergang von (1) zur Gleichung zweiter Ordnung wird durch den Operator $p_0 + \beta p_4 + Z/r$ vermittelt. Es entsteht

$$\left\{ \left(p_0 + \frac{\alpha Z}{r} \right)^2 - p_4^2 - p^2 + \frac{i \alpha Z}{r} \alpha_r \right\} \psi = 0. \quad (2)$$

Eine nochmalige Anwendung desselben Operators ergibt

$$\left\{ \left(p_0 + \beta p_4 + \frac{\alpha Z}{r} \right) \left[\left(p_0 + \frac{\alpha Z}{r} \right)^2 - p_4^2 - p^2 \right] + \frac{\alpha Z}{r^2} (i \mathbf{r} \mathbf{p} - \boldsymbol{\sigma} \mathbf{m}) \right\} \psi = 0. \quad (3)$$

Die letzte Gleichung ist besonders interessant, weil in ihr die Verbindung zwischen den großen (ψ_1, ψ_2) und den kleinen (ψ_3, ψ_4) Komponenten der Wellenfunktion gebrochen ist. Sie enthält implizite die Differentialgleichungen zweiter Ordnung der Radialkomponenten der Wellenfunktion, die wir mit R und \bar{R} bezeichnen wollen.

b) Spinfunktionen

Die wohlbekannten winkelabhängigen Wellenfunktionen des Spins und des Impulsmomentes seien hier schnell erledigt. Die beiden Bewegungskonstanten neben der Energie sind

$$\mathbf{M} = \mathbf{m} + \frac{1}{2} \boldsymbol{\sigma} \quad \text{und} \quad \kappa = (\boldsymbol{\sigma} \mathbf{m} + 1) \beta. \quad (4)$$

Wir setzen

$$M_z = m_j = m + \frac{1}{2}, \quad \kappa = \pm k. \quad (5)$$

Wegen

$$\mathbf{M}^2 + \frac{1}{4} = \mathbf{m}^2 + \boldsymbol{\sigma} \mathbf{m} + 1 = k^2 = \kappa^2, \quad (6)$$

brauchen wir keine andere gequantelte Größen als m_j und κ , wohl aber die Gleichungen

$$\mathbf{m}^2 = k^2 - \beta \kappa, \quad \boldsymbol{\sigma} \mathbf{m} = \beta \kappa - 1. \quad (7)$$

Wir schreiben nun die Lösung unserer Wellengleichungen in der leicht verständlichen Form,

$$\left. \begin{aligned} \psi &= \{ R \Phi, \bar{R} \bar{\Phi} \}, \\ \Phi &= \{ \Phi_1, \Phi_2 \}, \quad \bar{\Phi} = \{ \bar{\Phi}_1, \bar{\Phi}_2 \}, \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

und weiter zur Verkürzung

$$Y_l^m = P_l^m (\cos \vartheta) e^{i m \varphi}. \quad (9)$$

Es sei $\kappa = k = l + 1$. Dann liest man aus den ersten Gln. (5) und (7) die Form der Φ -Funktionen ab. Die letzte Gl. (4) oder (7) liefert die relativen Größen ihrer Koeffizienten. Es ergibt sich

$$\left. \begin{aligned} \Phi_1 &= (l + 1 + m) Y_l^m, & \Phi_2 &= -Y_l^{m+1}, \\ \bar{\Phi}_1 &= (l + 1 - m) Y_{l+1}^m, & \bar{\Phi}_2 &= Y_{l+1}^{m+1}. \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

Wir fügen sofort hinzu die Normierungsintegrale

$$\left. \begin{aligned} N_{\vartheta\varphi} &= \int (\Phi_1^2 + \Phi_2^2) \sin \vartheta d\vartheta d\varphi = 4\pi \frac{(l + m + 1)!}{(l - m)!} \\ &= \int (\bar{\Phi}_1^2 + \bar{\Phi}_2^2) \sin \vartheta d\vartheta d\varphi = \bar{N}_{\vartheta\varphi}. \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

Der Fall $\kappa = -k$ entspricht nach Gl. (7) genau einem Vorzeichenwechseln der Matrix β , was wieder ganz einfach eine Vertauschung von Φ und $\bar{\Phi}$ bedeutet.

Wir betrachten schließlich den Matrixoperator

$$\left. \begin{aligned} \alpha_r &= \alpha_1 \sin \vartheta \cos \varphi + \alpha_2 \sin \vartheta \sin \varphi + \alpha_3 \cos \vartheta \\ &= \begin{pmatrix} 0 & \sigma_r \\ \sigma_r & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_r = \begin{pmatrix} \cos \vartheta & \sin \vartheta e^{-i\varphi} \\ \sin \vartheta e^{i\varphi} & -\cos \vartheta \end{pmatrix}, \end{aligned} \right\} \quad (12)$$

wobei also σ_r eine zweidimensionale und α_r eine vierdimensionale Matrix darstellen. Mittels der Hilfsgleichungen

$$\left. \begin{aligned} \cos \vartheta P_{l+1}^{(m+1)} - P_l^{(m+1)} &= (l + 1 - m) P_{l+1}^{(m)}, \\ P_{l+1}^{(m+1)} - \cos \vartheta P_l^{(m+1)} &= (l + 1 + m) P_l^{(m)}, \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

leitet man leicht die Beziehungen ab,

$$\left. \begin{aligned} \Phi_2 &= \sin \vartheta e^{i\varphi} \bar{\Phi}_1 - \cos \vartheta \bar{\Phi}_2, \\ \bar{\Phi}_2 &= \sin \vartheta e^{i\varphi} \Phi_1 - \cos \vartheta \Phi_2. \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

Das sind die zweite und vierte Komponentengleichungen der Relation

$$\alpha_r \{ \Phi, \bar{\Phi} \} = \{ \Phi, \bar{\Phi} \}. \quad (15)$$

Der Operator α_r hat also den Effekt, die radialen Komponenten R und \bar{R} zu vertauschen, Φ und $\bar{\Phi}$ aber ungeändert zu lassen. Unsere Gln. (1) bis (3) dürfen wir daher auch als Gleichungen einer zweikomponentigen Wellenfunktion $\psi = \{R, \bar{R}\}$ auffassen, mit der Bedeutung

$$\alpha_r \{R, \bar{R}\} = \{\bar{R}, R\}, \quad \beta \{R, \bar{R}\} = \{R, -\bar{R}\}, \quad (16)$$

der Matrixoperatoren α und β .

c) Radiale Eigenfunktionen und Feinstrukturformel

Wir führen nun die bequemere neue Koordinate

$$x = 2r(p_1^2 - p_0^2)^{\frac{1}{2}} = 2r(m_0^2 c^4 - E^2)^{\frac{1}{2}}/\hbar c$$

ein zusammen mit den Verkürzungen

$$n^* = \frac{\alpha Z E}{(m_0^2 c^4 - E^2)^{\frac{1}{2}}}, \quad \varepsilon = \frac{\alpha Z (m_0^2 c^4 - E^2)^{\frac{1}{2}}}{\beta m_0 c^2 + E}. \quad (17)$$

ε ist also zweideutig und gehorcht der quadratischen Gleichung,

$$\varepsilon^2 + 2n^* \varepsilon = \alpha^2 Z^2, \quad (18)$$

mit den beiden Lösungen

$$\varepsilon = \left\{ \begin{matrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_2 \end{matrix} \right\} = -n^* \pm \sqrt{n^{*2} + \alpha^2 Z^2}. \quad (18a)$$

Das entspricht den beiden Werten $\beta = \pm 1$, und die beiden ε gelten also für große und kleine Komponenten, beziehungsweise. Unter ε werden wir im folgenden ε_1 verstehen.

Die Gln. (2) und (3) schreiben sich nun

$$\left\{ \begin{aligned} x^2 \frac{d^2}{dx^2} + 2x \frac{d}{dx} - \lambda(\lambda - \delta) - \frac{x^2}{4} + n^* x \Big\} \psi = 0, \\ \lambda^2 = k^2 - \alpha^2 Z^2, \quad \lambda \delta = \beta \kappa + i \alpha Z \alpha_r, \end{aligned} \right\} \quad (19)$$

und

$$\left\{ \begin{aligned} \left(1 + \frac{2\varepsilon}{x}\right) \left[x^2 \frac{d^2}{dx^2} + 2x \frac{d}{dx} + \beta \kappa - \lambda^2 - \frac{x^2}{4} + n^* x \right] + \\ + \frac{2\varepsilon}{x} \left[x \frac{d}{dx} + 1 - \beta \kappa \right] \Big\} \psi = 0. \end{aligned} \right\} \quad (20)$$

Betrachten wir zunächst die erstere. Es kommutiert ja der Operator x mit $\alpha \mathbf{p}$, deswegen auch mit $\alpha \mathbf{r}$ und α_r . Wegen des Faktors β sind βx und α_r antikommutativ. Daraus folgt die sehr nützliche Gleichung

$$\delta^2 = 1. \quad (21)$$

Wenden wir nun die Operatoren $\delta \pm 1$ an (19) an, und schreiben wir

$$(\delta + 1) \psi = C_1 R_1, \quad (\delta - 1) \psi = C_2 R_2, \quad (22)$$

so ergeben sich die beiden Gleichungen

$$\left\{ x^2 \frac{d^2}{dx^2} + 2x \frac{d}{dx} - \lambda(\lambda \pm 1) - \frac{x^2}{4} + n^* x \right\} \begin{Bmatrix} R_1 \\ R_2 \end{Bmatrix} = 0. \quad (23)$$

Wir setzen

$$n^* = n + \frac{1}{2} \lambda, \quad (24)$$

wobei n eine ganzzahlige radiale Quantenzahl ist. Aus der ersten Gl. (17) ergibt sich dann die Feinstrukturformel.

Weiter dürfen wir die relativen Größen von R_1 und R_2 durch die Gleichungen erster Ordnung definieren,

$$\left. \begin{aligned} \left(\frac{d}{dx} + \frac{1-\lambda}{x} + \frac{n^*}{2\lambda} \right) R_1 &= - \frac{\lambda - n^*}{2\lambda} R_2, \\ \left(\frac{d}{dx} + \frac{1-\lambda}{x} - \frac{n^*}{2\lambda} \right) R_2 &= \frac{\lambda - n^*}{2\lambda} R_1. \end{aligned} \right\} \quad (25)$$

weil sie durch Elimination von R_2 oder R_1 in (23) übergehen. Wie leicht ersichtlich ist, haben dann die höchsten Potenzen $e^{-\frac{1}{2}x} x^{n^*-1}$ der beiden Funktionen dieselben Koeffizienten. Mit der Definition,

$$L_{m+n}^m(x) = \sum_{k=0}^n \binom{n+m}{n-k} \frac{(-x)^k}{k!}, \quad (26)$$

der Laguerre-Polynome können wir sie hinschreiben als

$$R_1 = L_{n^*}^{\lambda-1} e^{-\frac{1}{2}x} x^{\lambda-1}, \quad R_2 = L_{n^*-1}^{\lambda} e^{-\frac{1}{2}x} x^{\lambda}. \quad (27)$$

Wir schreiben zunächst,

$$R = c_1 R_1 + c_2 R_2, \quad \bar{R} = \bar{c}_1 R_1 + \bar{c}_2 R_2. \quad (28)$$

Mit Hilfe der Gln. (22) und der Matrizengleichung,

$$\lambda(\delta \pm 1) = \begin{pmatrix} \kappa \pm \lambda & i\alpha Z \\ i\alpha Z & -(\kappa \mp \lambda) \end{pmatrix}, \quad (29)$$

erhalten wir mühelos,

$$\frac{\bar{c}_1}{c_1} = \frac{i\alpha Z}{\kappa - \lambda}, \quad \frac{\bar{c}_2}{c_2} = \frac{i\alpha Z}{\kappa + \lambda}. \quad (30)$$

Es bleibt nur übrig das Verhältnis c_2/c_1 zu bestimmen. Für diesen Zweck ist Gl. (20) die geeignetste. Mit dem ersten Ansatz (28) und $\beta=1$ erhalten wir unter Berücksichtigung von (25),

$$\begin{aligned} & (\kappa - \lambda) c_1 R_1 + (\kappa + \lambda) c_2 R_2 + \\ & + \frac{2\varepsilon}{\lambda} \left\{ \left[x \frac{d}{dx} + (1 - \lambda) \right] c_1 R_1 + \left[x \frac{d}{dx} + (1 + \lambda) \right] c_2 R_2 \right\} \\ & = \{ (\kappa - \lambda - \varepsilon n^*/\lambda) c_1 - \varepsilon (\lambda + n^*)/\lambda \cdot c_2 \} R_1 + \\ & + \{ (\kappa + \lambda + \varepsilon n^*/\lambda) c_2 - \varepsilon (\lambda - n^*)/\lambda \cdot c_1 \} R_2 = 0. \end{aligned} \quad (31)$$

Das ergibt zwei Werte von c_2/c_1 , die aber wegen (18) gleich sind. Man findet

$$c_2 = \frac{\lambda - \kappa + \varepsilon}{\lambda + \kappa} c_1, \quad (32)$$

und wir nehmen die sowohl für $\kappa = k$ als $\kappa = -k$ gültige Form,

$$R = \frac{\lambda + \kappa - \varepsilon}{2\lambda} R_1 + \frac{\lambda - \kappa + \varepsilon}{2\lambda} R_2, \quad (33)$$

die im nicht-relativistischen Fall $\alpha Z \rightarrow 0$ für $\kappa = \pm k$ in $R = R_1$ und $R = R_2$ bzw. übergehen.

Die Koeffizienten \bar{c}_1, \bar{c}_2 von (28) sind durch (30) gegeben. Es empfiehlt sich aber das Verhältnis dieser Koeffizienten mit Hilfe von (32) zu berechnen. Dadurch ergibt sich,

$$\frac{\bar{c}_2}{\bar{c}_1} = \frac{\kappa + \lambda}{\kappa - \lambda} \frac{c_2}{c_1} = - \frac{\alpha^2 Z^2 - (\kappa + \lambda) \varepsilon_1}{\alpha^2 Z^2 - (\kappa - \lambda) \varepsilon_1} = \frac{\lambda + \kappa + \varepsilon_2}{\lambda - \kappa - \varepsilon_2}, \quad (34)$$

indem wir wegen (18) $\alpha^2 Z^2 = -\varepsilon_1 \varepsilon_2$ gesetzt haben. (32) und (34) können jetzt als Spezialfälle der allgemeineren Gleichung

$$\frac{c_2/c_1}{\bar{c}_2/\bar{c}_1} \left\{ \right. = \frac{\lambda - \beta \kappa + \varepsilon}{\lambda + \beta \kappa - \varepsilon} \quad (35)$$

angesehen werden, indem man für die großen Komponenten $\beta = 1$, $\varepsilon = \varepsilon_1$ und für die kleinen $\beta = -1$, $\varepsilon = \varepsilon_2$ wählt.

d) Das radiale Normierungsintegral

Wir haben die beiden gleich große Normierungsintegrale (14) der Winkeleigenfunktionen großer und kleiner Komponenten schon abgeleitet. Wir gehen nun zu dem radialen Normierungsintegral,

$$N_R = \int_0^\infty \{R^2 + |\bar{R}|^2\} x^2 dx = N + \bar{N}, \quad (36)$$

über, und benutzen als Hilfsgrößen

$$N_{11} = \int_0^\infty R_1^2 x^2 dx, \quad N_{12} = \int_0^\infty R_1 R_2 x^2 dx, \quad N_{22} = \int_0^\infty R_2^2 x^2 dx. \quad (37)$$

Durch elementare Rechnungen erhält man

$$N_{11} = \frac{n^*}{n^* - \lambda} N_{12}, \quad N_{12} = 2 \frac{(n^* + \lambda)!}{(n^* - \lambda)!}, \quad N_{22} = \frac{n^*}{n^* - \lambda} N_{12}. \quad (38)$$

Mit Hilfe von (18), oder anders geschrieben,

$$2\varepsilon n^* = \kappa^2 - \lambda^2 - \varepsilon^2, \quad (39)$$

ergibt sich

$$\frac{n^*}{n^* + \lambda} = \frac{\kappa^2 - \lambda^2 - \varepsilon^2}{(\kappa + \lambda - \varepsilon)(\kappa - \lambda + \varepsilon)}, \quad \frac{n^*}{n^* - \lambda} = - \frac{\kappa^2 - \lambda^2 - \varepsilon^2}{(\kappa + \lambda + \varepsilon)(\kappa - \lambda - \varepsilon)}, \quad (40)$$

und beim Einsetzen von (33) in (36),

$$N = \frac{N_{12}}{4\lambda^2} \left\{ (\kappa^2 - \lambda^2 - \varepsilon^2) \left[\frac{\lambda + \kappa - \varepsilon}{\kappa - \lambda + \varepsilon} - \frac{\lambda - \kappa + \varepsilon}{\kappa + \lambda - \varepsilon} \right] + \right. \\ \left. + 2[\lambda^2 - (\kappa - \varepsilon)^2] \right\} = \frac{N_{12}(\kappa^2 + \varepsilon^2 - \lambda^2)}{(\kappa + \varepsilon)^2 - \lambda^2}. \quad (41)$$

Hinsichtlich \bar{N} bemerken wir, daß

$$\frac{\alpha^2 Z^2}{(\kappa + \lambda)^2} = 1 - \frac{2\lambda}{\kappa + \lambda}, \quad \frac{\alpha^2 Z^2}{(\kappa + \lambda)(\kappa - \lambda)} = 1, \quad \frac{\alpha^2 Z^2}{(\kappa - \lambda)^2} = 1 + \frac{2\lambda}{\kappa - \lambda}. \quad (42)$$

Man findet nun unschwer,

$$\bar{N} = N + N_{12} \frac{\kappa^2 - \lambda^2 - \varepsilon^2}{(\kappa + \varepsilon)^2 - \lambda^2} \left[-1 - \frac{\varepsilon^2}{\kappa^2 - \lambda^2} \right] = N \frac{\varepsilon^2}{\kappa^2 - \lambda^2}, \quad (43)$$

und schließlich,

$$N_R = N + \bar{N} = \frac{N_{12}(\kappa^2 + \varepsilon^2 - \lambda^2)^2}{[(\kappa + \varepsilon)^2 - \lambda^2][\kappa^2 - \lambda^2]}. \quad (44)$$

Durch Elimination von λ^2 nach (39) ergibt sich die Schlußformel

$$N_R = N_{12} \frac{(n^* + \varepsilon)^2}{(n^* + \varepsilon + \kappa)(n^* + \frac{1}{2}\varepsilon)}. \quad (45)$$

Wegen $\kappa = \lambda + O(\alpha^2 Z^2)$ und $\varepsilon = O(\alpha^2 Z^2)$ ist

$$N_R = \left\{ \begin{matrix} N_{11} \\ N_{22} \end{matrix} \right\} + O(\alpha^2 Z^2), \quad \text{bzw.} \quad \text{für } \kappa = \pm k, \quad (46)$$

d.h., als $\alpha Z \rightarrow 0$, bekommen wir die Normierungsintegrale der nicht-relativistischen Funktionen mit Azimutalquantenzahlen l und $l+1$, wenn $k = l+1$.

Wegen der sehr verschiedenen Ausdrucksweise ist es nicht ganz überflüssig, das obige N_R mit anderswo angegebenen Integralen zu identifizieren¹.

Wenn man von dem unmittelbaren r -Raum zu unserem transformierten κ -Raum übergeht, kann man die Sommerfeldsche Formel schon etwas verkürzen, zu

$$N_\kappa^{-2} = 4A \frac{(n^* - 1 - \lambda)! [(2\lambda)!]^2}{(n^* + \lambda)!} \cdot \frac{n^* m_0^2 c^4}{(m_0 c^2 + E)E}, \quad (47)$$

in unserer Schreibweise.

Aus einer Formel (Ref. 1) S. 289 erkennt man, daß

$$A = \frac{n^* + \lambda}{n^* + \varepsilon - \kappa} = \frac{n^* + \varepsilon + \kappa}{n^* - \lambda}. \quad (48)$$

¹ Siehe z.B. A. SOMMERFELD: Atombau und Spektrallinien, Bd. II, S. 760.

Weiter ist der Anfangsterm seiner R -Funktion (R_1 genannt), nämlich

$$-\frac{k + \lambda - \varepsilon}{n^* + \varepsilon - k} e^{-\frac{1}{2}x} x^{\lambda-1},$$

mit unserem

$$\frac{(k + \lambda - \varepsilon)(n^* + \lambda - 1)!}{(n^* - \lambda)!(2\lambda)!} e^{-\frac{1}{2}x} x^{\lambda-1}$$

zu vergleichen.

Beim Multiplizieren von (47) mit dem Quadrat des Verhältnisses ergibt sich

$$N_R = N_{12} \frac{n^* + \varepsilon - k}{(n^* + \lambda)(n^* - \lambda)} \frac{2n^* m_0^2 c^4}{(m_0 c^2 + E)E}. \quad (49)$$

Der erste Bruch kann wegen (48) durch $1/(n^* + \varepsilon + \kappa)$ ersetzt werden. Mit Hilfe der Identitäten

$$\frac{2E}{n^*(m_0 c^2 + E)} = \frac{2\varepsilon}{\alpha^2 Z^2} = \frac{1}{n^* + \varepsilon/2}, \quad \frac{n^{*2} m_0^2 c^4}{E^2} = n^{*2} + \alpha^2 Z^2 = (n^* + \varepsilon)^2, \quad (50)$$

vollzieht sich nun die Identifizierung mit (45).

2. Die Eigenfunktionen des kontinuierlichen Energiespektrums

a) Die Funktionen R_1 und R_2 als konfluent hypergeometrische Funktionen

Wir erinnern an die konfluent hypergeometrische Reihe

$$F(a, b, x) = 1 + \frac{a}{b} \frac{x}{1!} + \frac{a(a+1)}{b(b+1)} \frac{x^2}{2!} + \dots, \quad (1)$$

und ihre Differentialgleichung

$$\left\{ x^2 \frac{d^2}{dx^2} + (b-x) \frac{d}{dx} - a \right\} F(a, b, x) = 0. \quad (2)$$

Wir schreiben,

$$R_1 = e^{-\frac{1}{2}x} x^{\lambda-1} L_1, \quad R_2 = e^{-\frac{1}{2}x} x^{\lambda-1} L_2, \quad (3)$$

und erhalten für L_1 und L_2 die konfluent hypergeometrischen Gleichungen

$$\left. \begin{aligned} \left\{ x \frac{d^2}{dx^2} + (2\lambda - x) \frac{d}{dx} + n^* - \lambda \right\} L_1 &= 0, \\ \left\{ x \frac{d^2}{dx^2} + (2\lambda + 2 - x) \frac{d}{dx} + n^* - \lambda - 1 \right\} L_2 &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

Im Falle offener Zustände wird n^* imaginär, und es gibt keine höchsten Potenzen der Reihen zu vergleichen. Statt dessen vergleichen wir die niedrigsten Potenzen,

$$\frac{R_2}{R_1} \rightarrow -\frac{2\lambda + n}{2\lambda(2\lambda + 1)} x, \quad \text{wenn } x \rightarrow 0. \quad (5)$$

Mit einer anderen Normierung schreiben wir jetzt,

$$\left. \begin{aligned} R_1 &= e^{-\frac{1}{2}x} x^{\lambda-1} F(\lambda - n^*, 2\lambda, x), \\ R_2 &= -\frac{(\lambda + n^*) e^{-\frac{1}{2}x} x^\lambda}{2\lambda(2\lambda + 1)} F(\lambda + 1 - n^*, 2\lambda + 2, x). \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

b) *Formale Lösungen wenn $E > m_0 c^2$*

Formale Lösungen sind aus den obigen Lösungen erhältlich. Zunächst muß man sich aber für das eine odere andere Vorzeichen der Quadratwurzel in (1.17) entscheiden. Schreiben wir

$$(m_0^2 c^4 - E^2)^{\frac{1}{2}} = -i(E^2 - m_0^2 c^4)^{\frac{1}{2}} \quad (7)$$

und nehmen wir dementsprechend als neue Variable,

$$x' = 2r(E^2 - m_0^2 c^4)^{\frac{1}{2}}/c\hbar, \quad (8)$$

und als neue Hilfsgrößen

$$N = \frac{\alpha Z E}{(E^2 - m_0^2 c^4)^{\frac{1}{2}}}, \quad \varepsilon' = \frac{\alpha Z (E^2 - m_0^2 c^4)^{\frac{1}{2}}}{\beta m_0 c^2 + E}, \quad (9)$$

so hat man die früheren Variablen und Hilfsgrößen folgendermaßen durch neue zu ersetzen,

$$x = -ix', \quad n^* = iN, \quad \varepsilon = -i\varepsilon'. \quad (10)$$

Es wird

$$\left. \begin{aligned} \psi &= \{R\Phi, \bar{R}\bar{\Phi}\}, \\ R &= \frac{\lambda + \kappa + i\varepsilon'}{2\lambda} R_1(-ix') + \frac{\lambda - \kappa - i\varepsilon'}{2\lambda} R_2(-ix'), \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

während \bar{R} wie früher erhalten wird durch Multiplikation der beiden Koeffizienten mit $i\alpha Z/(\kappa + \lambda)$ und $i\alpha Z/(\kappa - \lambda)$, bzw.

c) *Aus- und einlaufende Wellen*

Eine andere anscheinend verschiedene Lösung erhielte man beim Ersetzen von i durch $-i$. Die beiden Lösungen sind aber regulär in $x'=0$ und deswegen identisch bis auf einen komplexen, numerischen Faktor. Die beiden Funktionen R können natürlich durch eine einzige reelle Funktion ausgedrückt werden.

Diese Funktion hat wie gewöhnlich für $x' \rightarrow \infty, r \rightarrow \infty$ asymptotische Formen, die ein- und auslaufende Kugelwellen darstellen, und die vom physikalischen Gesichtspunkte aus interessanter sind als die obigen Ausdrücke, die nur im Gebiet $x \rightarrow 0$ übersichtlich sind.

Falls es sich um begrenzte Coulomb-Felder handelt, wie im Innern eines durch Elektronen abgeschirmten Atoms, wird die Sachlage anders.

Dann wird man im äußeren Gebiet lieber für die Wellenfunktionen der feldfreien Dirac-Gleichung Gebrauch haben, indem man sie im Übergangsgebiet möglichst gut mit den Lösungen des inneren Coulomb-Feldes zusammenknüpft.

Wir lassen daher die erwähnten asymptotischen Darstellungen bei Seite und erwähnen kurz die Darstellung von freien Wellen.

3. Lösung der kräftefreien Gleichung in Cartesischen und polaren Koordinaten

a) Konstruktion von vierkomponentigen freien Wellen

Die feldfreie Wellengleichung lautet in unserer Schreibweise,

$$(\alpha \mathbf{p} + \beta p_4 - p_0) \psi = 0. \quad (1)$$

Statt der vollen vierkomponentigen Form wollen wir die etwas verkürzte Form benutzen,

$$D\psi = 0, \quad D = \begin{pmatrix} p_4 - p_0 & \sigma \mathbf{p} \\ \sigma \mathbf{p} & -(p_4 + p_0) \end{pmatrix}, \quad \sigma \mathbf{p} = \begin{pmatrix} p_z & p_x - i p_y \\ p_x + i p_y & -p_z \end{pmatrix}. \quad (2)$$

Wir führen einen anderen Operator ein,

$$D' = \begin{pmatrix} 1 & \sigma \mathbf{p} \\ \sigma \mathbf{p} & p_0 - p_4 \end{pmatrix}, \quad (3)$$

und stellen die wichtige Matrizengleichung fest,

$$DD' = 0. \quad (4)$$

Jede der Komponenten von $\psi = \{\psi_1, \psi_2, \psi_3, \psi_4\}$ muß der Gleichung

$$\{V^2 + k^2\} \Psi = 0, \quad k^2 = p_0^2 - p_4^2 \quad (5)$$

gehörchen.

Nehmen wir nun eine Wellenfunktion, die zwar (5), aber nicht (1) oder (2) befriedigt, sagen wir,

$$\Psi = \{\Psi, 0, 0, 0\}, \quad (6)$$

so folgt aus (4), daß

$$\psi = D' \Psi = \left\{ \Psi, 0, \frac{p_z}{p_0 + p_4} \Psi, \frac{p_x + i p_y}{p_0 + p_4} \Psi \right\}, \quad (7)$$

auch eine Lösung von (1) und (2) ist.

Man sieht leicht ein, daß dies für jede ein- oder vierkomponentige Form von (6) gilt.

b) Ebene und sphärische Wellen

Wenn wir oben in (6) und (7) die Funktion Ψ in Form einer ebenen Welle ansetzen, sagen wir in der z -Richtung,

$$\Psi = e^{i k z}, \quad (8)$$

erhalten wir die Lösung,

$$\psi = \left\{ \Psi, 0, \frac{\hbar \Psi}{p_0 + p_4}, 0 \right\}, \quad (9)$$

wobei die dritte Komponente selbst eine ebene Welle ist. In ähnlicher Weise finden wir

$$\left. \begin{aligned} \Psi &= \{0, \Psi, 0, 0\} \\ \psi &= \left\{ 0, \Psi, 0, -\frac{\hbar \Psi}{p_0 + p_4} \right\} \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

In beiden Fällen (9) und (10) ist $m_z = 0$, deswegen $\sigma_z = \pm 1$ bzw. Die Wellen sind also gequantelt in bezug auf die z -Komponente des Elektronenspins. Sie stellen ein positiv und ein negativ polarisiertes Elektron dar in bezug auf die Bewegungsrichtung. Die Ansätze $\Psi = \{0, 0, \Psi, 0\}$ und $\Psi = \{0, 0, 0, \Psi\}$ wiederholen nur die obigen Lösungen. Die Größe $\kappa = (\sigma m + 1)\beta$ ist nicht gequantelt.

Da die einzige Forderung an die Funktion Ψ , die wir zu stellen haben, ist, daß sie der Gl. (5) genügt, dürfen wir sie auch in der Form einer Kugelwelle

$$\Psi = e^{\pm i k r} / r \quad (11)$$

ansetzen. Die zugehörigen Lösungen der vierkomponentigen Wellengleichung sind von besonderem Interesse wegen ihrer Verwandtschaft mit der Greenschen Funktion $\psi = e^{-i k r} / (2\pi r)$ der nicht-relativistischen Gleichung $(\nabla^2 + k^2)\psi = 0$, $k^2 = 2m_0 E / \hbar^2$.

Nehmen wir z.B.

$$\Psi = e^{i k r} / r, \quad (12)$$

und betrachten wir den ersten Fall,

$$\Psi = \{\Psi, 0, 0, 0\}, \quad \psi = \{\Psi, 0, \cos \vartheta \Psi_1, \sin \vartheta e^{i\varphi} \Psi_1\}, \quad (13)$$

wobei

$$\Psi_1 = \frac{1}{p_0 + p_4} \frac{1}{i} \frac{\partial \Psi}{\partial r}, \quad (13a)$$

so haben wir eine gequantelte Lösung mit

$$M_z = m_z + \frac{1}{2} \sigma_z = m_j, \quad m_j = \frac{1}{2}, \quad \kappa = 1. \quad (13b)$$

Um das Resultat für die Größe κ leicht einzusehen, ist es nützlich die Ausdrücke

$$\left. \begin{aligned} m_x + i m_y &= e^{i\varphi} \left\{ \frac{\partial}{\partial \vartheta} + i \cotg \vartheta \frac{\partial}{\partial \varphi} \right\}, \\ m_x - i m_y &= e^{-i\varphi} \left\{ -\frac{\partial}{\partial \vartheta} + i \cotg \vartheta \frac{\partial}{\partial \varphi} \right\}, \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

an der Hand zu haben.

Eine zweite gequantelte Lösung ist

$$\Psi = \{0, \Psi, 0, 0\}, \quad \psi = \{0, \Psi, \sin \vartheta e^{-i\varphi} \Psi_1, -\cos \vartheta \Psi_1\}, \quad (15)$$

mit

$$m_j = -\frac{1}{2}, \quad \kappa = 1.$$

Die Anfangsfunktionen $\Psi = \{0, 0, \Psi, 0\}$ und $\Psi = \{0, 0, 0, \Psi\}$ führen zu Lösungen mit $m_j = \pm \frac{1}{2}$ bzw., aber mit $\kappa = -1$. Sie sind also nicht, wie im Falle ebener Wellen, mit den Beispielen $\Psi = \{\Psi, 0, 0, 0\}$ und $\Psi = \{0, \Psi, 0, 0\}$ identisch.

c) Kugelwellen höherer Impulsmomente

In den obigen Beispielen hatte unsere Hilfsfunktion Ψ das Impulsmoment $l=0$, und in den vierkomponentigen Lösungen traten nebenbei Komponenten mit $l=1$ auf.

Wir gehen nun zu Lösungen mit höheren Impulsmomenten über, indem wir die neue Hilfsfunktion,

$$\Psi_l^l = k^{-l} (p_x + i p_y)^l \Psi, \quad (16)$$

eingeführen. Der Operator $p_x + i p_y$ kommutiert ja mit V^2 . Somit ist (16) eine Lösung der quadratischen Gl. (5).

In Polarkoordinaten schreibt sich Ψ_l^l besonders einfach, nämlich

$$\Psi_l^l = \sin^l \vartheta e^{il\varphi} \cdot R_l, \quad R_l = r^l [(kr)^{-1} p_r]^l \Psi \quad (17)$$

mit $p_r = -i d/dr$. Die ersten R_l -Funktionen sind

$$R_0 = \frac{e^{ikr}}{r}, \quad R_1 = R_0 \left(1 - \frac{1}{ikr} \right), \quad R_2 = R_0 \left(1 - \frac{3}{ikr} + \frac{3}{(ikr)^2} \right), \quad \text{usw.}, \quad (17a)$$

und ihre Differentialgleichung lautet

$$\left\{ r^2 \frac{d^2}{dr^2} + 2r \frac{d}{dr} - l(l+1) + k^2 r^2 \right\} R_l = 0. \quad (18)$$

Die Funktion Ψ_l^l hat das maximale Impulsmoment in der z -Richtung. Leider kann man nicht eine entsprechende Funktion Ψ_l^m mit $m_z = m < l$ in einer entsprechend einfachen Weise, sagen wir mit Hilfe des Operators $(p_x + i p_y)^m p_z^{l-m}$, aus Ψ produzieren. Die resultierende Funktion Ψ_l^m

ist zwar eine Lösung von (5) mit $m_z = m$, ist aber eine Mischung von Funktionen mit verschiedenen l , ($l, l-2, l-4, \dots$). Doch darf man den Operator p_z einmal benutzen um aus Ψ_l^l

$$p_z \Psi_l^l = k \cos \vartheta \sin^l \vartheta e^{il\varphi} R_{l+1} \quad (19)$$

zu produzieren. Somit erhalten wir die spezielle Lösung der kräftefreien Wellengleichung,

$$\psi = \left\{ \begin{array}{l} \Phi_1 R, \quad \Phi_2 R, \quad \bar{\Phi}_1 \bar{R}, \quad \bar{\Phi}_2 \bar{R}, \\ R = R_l, \quad \bar{R} = R_{l+1}/(p_0 + p_4), \end{array} \right\} \quad (20)$$

wobei zunächst

$$\Phi_1 = (2l+1) Y_l^l, \quad \Phi_2 = 0, \quad \bar{\Phi}_1 = Y_{l+1}^l, \quad \bar{\Phi}_2 = Y_{l+1}^{l+1}, \quad (20a)$$

mit $m_j = l + \frac{1}{2}$, $k = l + 1$.

In (20) kann man aber auch die uns früher bekannten allgemeineren Φ -Funktionen,

$$\{\Phi_1, \Phi_2, \bar{\Phi}_1, \bar{\Phi}_2\} = \{(l+1+m) Y_l^m, -Y_l^{m+1}, (l+1-m) Y_{l+1}^m, Y_{l+1}^{m+1}\}, \quad (20b)$$

mit $m_j = m + \frac{1}{2}$ benutzen, denn die gequantelte Größe m_j geht in die Wellengleichung der radialen Eigenfunktion nicht ein.

Wir haben also die gequantelten Lösungen der kräftefreien Wellengleichung in Polarkoordinaten erhalten, allerdings nicht ausschließlich durch Operatortechnik, wegen des Versagens der Nutzbarkeit von p_z im Vergleich mit $p_x + ip_y$.

Indem wir die Fälle mit anderen Werten von m_j und κ vorübergehen, wenden wir uns jetzt an das Problem der Auflösung einer ebenen Welle in Kugelwellen.

d) Ebene Wellen durch sphärische Wellen dargestellt

Dieses Problem ist bei vierdimensionalen Spinorfunktionen nicht mehr so einfach wie im nicht-relativistischen Fall. Nehmen wir als Beispiel die ebene Welle in der z -Richtung

$$\left\{ \begin{array}{l} \Psi = \{e^{ikz}, 0, 0, 0\}, \\ \psi = \left\{1, 0, \frac{k}{p_0 + p_4}, 0\right\} e^{ikz}. \end{array} \right\} \quad (21)$$

Wir benutzen die bekannte Auflösung,

$$\left\{ \begin{array}{l} e^{ikz} = \sum_l (2l+1) i^l P_l(\cos \vartheta) f_l(r), \\ f_l(r) = \frac{i^{-l}}{2} \int_{-1}^1 e^{ikr\xi} P_l(\xi) d\xi, \end{array} \right\} \quad (22)$$

welche wegen des asymptotischen Verhaltens von $f_l(r)$, $r \rightarrow \infty$, zu

$$f_l(r) = \frac{1}{2i^k} \{i^{-l} R_l - i^{-l} R_l^*\} \quad (22a)$$

führt. Da die beiden Komponenten von ψ in (21) dieselbe Raumfunktion haben, ist eine Auflösung in sphärische Wellen tatsächlich erzielt.

Es wäre aber verfehlt zu glauben, daß die einzelnen Terme, mit gemeinsamen Winkelfunktionen $P_l(\cos \vartheta)$ zusammengefügt, Lösungen der Wellengleichung seien. Und das ist ja eine Voraussetzung, wenn man bei Strahlungs- oder Streuungsproblemen die Störung der einzelnen Glieder berechnen möchte. Die Glieder müssen daher in anderer Weise geordnet werden, und es müssen sogar andere Glieder hinzugefügt werden, um das gewünschte zu erzielen.

Wir können daher nicht mit den Lösungen für $\kappa = k = l + 1$ herauskommen, sondern wir müssen auch diejenigen mit $\kappa = -k$ heranziehen. Wir schreiben daher

$$\left. \begin{aligned} \psi_l^+ &= \{(\ell + 1) Y_l R, -Y_l^1 R, (\ell + 1) Y_{l+1} \bar{R}, Y_{l+1}^1 \bar{R}\}, \\ \psi_l^- &= \{(\ell + 1) Y_{l+1} R, Y_{l+1}^1 R, (\ell + 1) Y_l \bar{R}, -Y_l^1 \bar{R}\}, \end{aligned} \right\} \quad (23)$$

$$R = i^l f_l(r), \quad \bar{R} = \frac{k}{p_0 + p_4} i^{l+1} f_{l+1}(r). \quad (23a)$$

Die ebene Welle (21) ist dann identisch mit dem Ausdruck

$$\psi = \sum_{l=0}^{\infty} (\psi_l^+ + \psi_l^-). \quad (24)$$

Die Komponenten summieren sich auf in folgender Weise:

Komponente 2 und Komponente 4 $\times (p_0 + p_4)/k$:		Komponente 1 und Komponente 3 $\times (p_0 + p_4)/k$:	
$l = 0$	$Y_1^1 i f_1$	$l = 0$	$Y_0 f_0 + Y_1 i f_1$
1	$-Y_1^1 i f_1 + Y_2^1 i^2 f_2$	1	$2Y_1 i f_1 + 2Y_2 i^2 f_2$
2	$-Y_2^1 i^2 f_2 + Y_3^1 i^3 f_3$	2	$3Y_2 i^2 f_2 + 3Y_3 i^3 f_3$
.	.	.	.

Das Endresultat ist eine Nullkomponente für 2 und 4, dagegen für 1 und 3 die Entwicklung der Gl. (20).

Aus dem Heinrich-Beck-Institut für Lichtbogenforschung
der Deutschen Akademie der Wissenschaften zu Berlin in Meiningen

Über Ionisierungsgleichgewichte und Intensitäten von Spektrallinien in thermischen Mehrstoffplasmen

Von

M. RIEMANN

Mit 5 Figuren im Text

(Eingegangen am 26. Juni 1961)

Die üblichen Lichtquellen für den spektroskopischen Nachweis von Metallen enthalten thermische Mehrstoffplasmen der Art: Füllgas bzw. Luft und Metaldampf.

Durch den großen Unterschied der Ionisierungsenergien von Füllgas und Metaldampf tritt eine „Ionisierungspufferung“ im Plasma analog der Pufferung schwacher Elektrolyte auf. Der Temperaturverlauf der Intensität von Metalllinien kann stark vom Mischungsverhältnis abhängig werden.

I. Einleitung

Der Emissionskoeffizient ε pro Volumeneinheit und Raumwinkel-einheit einer Spektrallinie im thermischen Plasma der Temperatur T ist gegeben durch¹

$$\varepsilon = \frac{A_{nm}}{4\pi} \cdot h\nu \cdot \frac{g_m}{u_r(T)} \cdot N_r(T) \cdot e^{-\frac{E_a}{kT}}. \quad (1)$$

Dabei bedeuten

A_{nm} Die Einsteinsche Übergangswahrscheinlichkeit des Emissionsvorganges.

g_m Das statistische Gewicht des oberen Terms der Spektrallinie.

$u_r(T)$ Die Zustandssumme des r -fach ionisierten Atoms (wenn es sich um eine Spektrallinie des r -fach ionisierten Atoms handelt).

$N_r(T)$ Die Anzahl aller r -fach ionisierten Atome des betreffenden Elementes in der Volumeneinheit.

E_a Die Anregungsenergie der Spektrallinie.

$h\nu$ Die Energie des Lichtquants.

In einem thermischen Plasma, das sich aus den verschiedenen Ionisationsstufen eines einzigen Elementes und Elektronen zusammensetzt, ist die Abhängigkeit des Emissionskoeffizienten von der Temperatur

¹ MAECKER, H., u. W. FINKELNBURG: Handbuch der Physik, Bd. XXII, S. 353 ff. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1956.

von LARENZ und BARTELS² berechnet worden. Der Verlauf ist bei allen Spektrallinien ähnlich. Der Emissionskoeffizient steigt zunächst mit wachsender Temperatur infolge des Exponentialfaktors von (1) an. Gleichzeitig tritt jedoch eine Verarmung an strahlenden Partikeln ein;

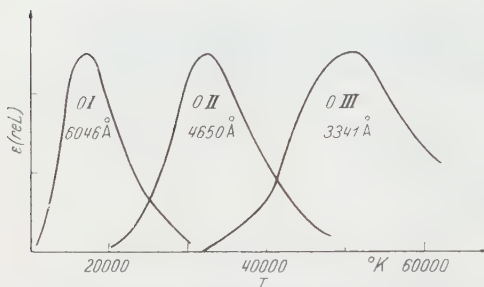


Fig. 1. Emissionskoeffizienten von drei O-Linien im Sauerstoffplasma

anfänglich allein infolge der Gasexpansion bei konstantem Druck, bei höheren Temperaturen zusätzlich infolge der Ionisierung zum nächsthöheren Ion. Die Kurve durchläuft ein Maximum und fällt wieder ab. In Fig. 1* sind die Emissionskoeffizienten mehrerer O-Linien aufgetragen.

Dieser Sachverhalt ist von LARENZ³ zur Entwicklung eines Temperaturmeßverfahrens benutzt worden. Das Meßverfahren ist unter anderem von BURHORN⁴, BURHORN, MAECKER und PETERS⁵ und LARENZ⁶ zur Bestimmung von Bogentemperaturen angewandt worden.

II. Ionisierungsgleichgewichte von Füllgas und Metall

Die Metallspektroskopie benutzt als Lichtquelle gewöhnlich Funken oder Bögen. Das Entladungsplasma setzt sich dabei aus dem Metaldampf und einem Füllgas bzw. Gasgemisch, meistens Luft, zusammen. Dabei rechnet man im allgemeinen mit einem Partialdruck des Metaldampfes von 10^{-3} atm bei Entladungen unter Atmosphärendruck⁷. Die Berechnung des Temperaturverlaufs des Emissionskoeffizienten einer Metallinie setzt die Auflösung eines Gleichungssystems für die Partialdruckkomponenten eines Mehrstoffplasmas voraus, wie es im folgenden für den Modellfall des Systems Cu-N aufgestellt worden ist.

$$P = P_{N_2} + P_N + P_{N^+} + P_{Cu} + P_{Cu^+} + P_e \quad (2a)$$

$$P_e = P_{N^+} + P_{Cu^+}; \quad \frac{P_{Cu^+}}{P_{Cu}} \cdot P_e = S_{Cu} \quad (2b), (2c)$$

$$\frac{P_{N^+}}{P_N} \cdot P_e = S_N; \quad \frac{P_N^2}{P_{N_2}} = S_{N_2} \quad (2d), (2e)$$

$$\frac{2 P_{N_2} + P_N + P_{N^+}}{P_{Cu} + P_{Cu^+}} = K. \quad (2f)$$

* Entnommen aus³.

² LARENZ, R. W., u. H. BARTELS: *Naturwissenschaften* **37**, 164 (1950).

³ LARENZ, R. W.: *Z. Physik* **129**, 327 (1951).

⁴ BURHORN, F.: *Z. Physik* **155**, 42 (1951).

⁵ BURHORN, F., H. MAECKER u. T. PETERS: *Z. Physik* **131**, 28 (1951).

⁶ LARENZ, R. W.: *Z. Physik* **129**, 343 (1951).

⁷ HULDT, L.: *Spectrochim. Acta* **7**, 264 (1955).

Darin bedeuten P : den Gesamtdruck des Plasmas (1 atm), P_{Cu} , P_{Cu^+} , P_{N_2} , P_{N} , P_{N^+} : die Partialdrücke der beiden Elemente im molekularen, atomaren und einfach ionisierten Zustand, P_e : den Elektronendruck, S_{Cu} , S_{N_2} und S_{N} die Saha-Funktionen⁸ für die Dissoziations- und Ionisationsgleichgewichte des N und Cu.

Durch die Lösung des Gleichungssystems (2a) bis (2f) ist P_{Cu} als Funktion der Temperatur bekannt. Multiplikation mit $1/kT$ ergibt die Größe $N(T)$ der Gl. (1), und man kann den relativen Verlauf von $\varepsilon(T)$ bestimmen.

Die Lösung solcher Gleichungssysteme ist schon mehrfach durchgeführt worden^{5, 9, 10, 11, 12}.

Im vorliegenden Modellfall wurde der einfacheren Rechnung halber die Molekülbildung des Stickstoffs nicht berücksichtigt. (Rechnungen für ähnliche Fälle unter Berücksichtigung der Molekülbildung ergaben Änderungen, die jedoch nicht das Wesentliche der Resultate betreffen.)

Das Gleichungssystem (2a) bis (2f) wurde im Temperaturbereich von 3000 bis 15000° K für verschiedene K , d.h. für verschiedene Mischungsverhältnisse zwischen N und Cu, gelöst und die Ionisierungsgleichgewichte des Stickstoffs und des Kupfers untersucht. In Fig. 2 ist $^{10}\log P_{\text{N}^+}/P_{\text{N}}$ in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen. Kurvenparameter ist K . Dabei bedeutet z. B. $K = 999$, daß ein Plasma vorliegt, in welchem auf einem Kupferkern 999 Stickstoffkerne entfallen.

Man erkennt aus Fig. 2, daß im Temperaturbereich von 3000° K bis 6000° K die Ionisierung des Stickstoffs schon durch geringste Mengen von Kupfer zurückgedrängt wird. Stärkere Metallbeimengungen machen

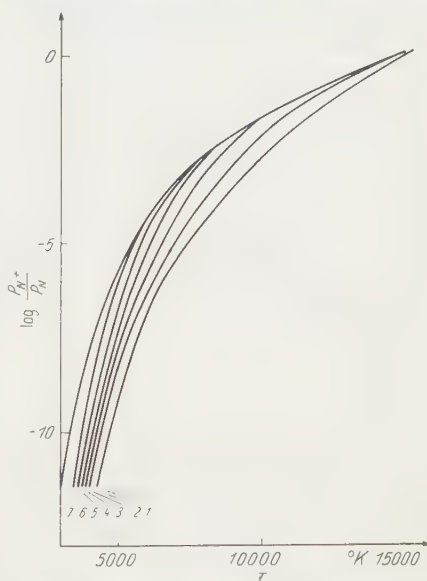


Fig. 2. Ionisierungsgleichgewichte von Stickstoff im Zweistoffplasma Stickstoff-Kupfer. Kurve 1: $K = 0$; Kurve 2: $K = 9$; Kurve 3: $K = 99$; Kurve 4: $K = 999$; Kurve 5: $K = 9999$; Kurve 6: $K = 99999$; Kurve 7: $K \rightarrow \infty$.

⁸ UNSÖLD, A.: Physik der Sternatmosphären, 2. Aufl., S. 79 ff. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1955.

⁹ WIENECKE, R.: Z. Physik **146**, 39 (1956).

¹⁰ BURHORN, F., u. R. WIENECKE: Z. phys. Chem. **215**, 269 (1960).

¹¹ BURHORN, F., u. R. WIENECKE: Z. phys. Chem. **215**, 285 (1960).

¹² SENOTSCHKI, J. B.: J. techn. Fiziki **31**, 188 (1961).

sich auch bei höheren Temperaturen bemerkbar. Das ist verständlich, da bei niedrigen Temperaturen der Elektronendruck vorwiegend vom Metall geliefert wird. Bei höheren Temperaturen ist bei geringem Metallanteil jedoch der Stickstoff der hauptsächliche Elektronenlieferant. Es ist daher zu erwarten, daß dadurch umgekehrt die vollständige Ionisierung des Metalls bei höheren Temperaturen beeinträchtigt wird.

In Fig. 3 ist $^{10}\log P_{\text{Cu}^+}/P_{\text{Cu}}$ in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen. Das Diagramm läßt zunächst den Eindruck entstehen, als ob von einer Hemmung der Ionisierung des Kupfers durch den Stickstoff nicht die Rede sein könne. Tatsächlich ist die Ionisierung des Kupfers bei Mi-

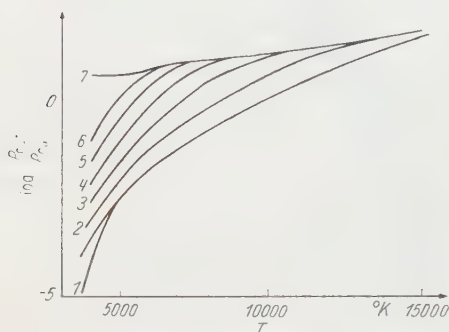


Fig. 3. Ionisierungsgleichgewichte von Kupfer im Zweistoffplasma Stickstoff-Kupfer. Kurvenindizierung s. Fig. 2

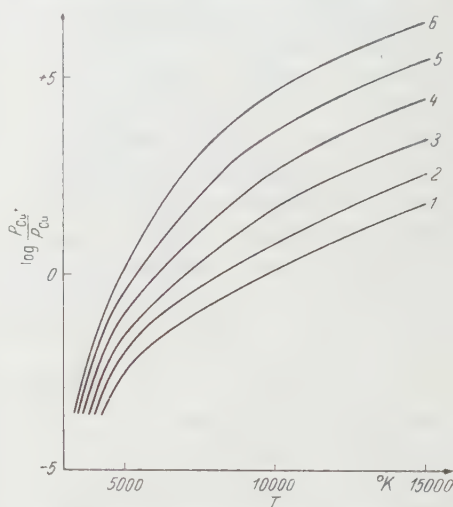


Fig. 4. Ionisierungsgleichgewichte von Kupfer, wie in Fig. 3, jedoch unter der Annahme, daß der Stickstoff nicht ionisiere

schungen, die mehr Stickstoff enthalten, größer. Es fällt allerdings schon auf, daß eine Grenzkurve der Ionisierung für verschiedenen Kupfergehalt existiert. Daß trotzdem eine erhebliche Hemmung der Ionisierung des Kupfers im Gemisch vorliegt, zeigt der Vergleich von Fig. 3 mit Fig. 4. In Fig. 4 ist das Ionisierungsverhalten des Kupfers bei den gleichen Mischungsverhältnissen wie in Fig. 3 dargestellt. Die Rechnung wurde dabei jedoch unter der Voraussetzung durchgeführt, daß der Stickstoff keine Elektronen liefere, d.h. selbst nicht ionisiere. Dem würde z.B. in dem betrachteten Temperaturbereich weitgehend ein Gemisch von Kupfer und Helium entsprechen.

Die gegenseitige Hemmung der Ionisierung von Füllgas und Metall stellt eine Analogie zur Pufferung schwacher Elektrolyte dar. Die Ursache dafür ist in der Gleichheit des zugrunde liegenden Massenwirkungsgesetzes zu suchen¹³.

¹³ EUCKEN-WICKE: Grundriß der physikalischen Chemie, 10. Aufl., S. 202 ff. Leipzig 1959.

III. Zur Intensität von Metallinien

Durch diese Veränderungen der Ionisierungsgleichgewichte werden die Emissionskoeffizienten von Spektrallinien des Metalls erheblich beeinflußt. In Fig. 5 ist der Emissionskoeffizient der Cu I-Linie 5105,54 Å in Abhängigkeit von der Temperatur in willkürlichem Maßstab aufgetragen. Kurvenparameter ist wieder das Mischungsverhältnis K zwischen Stickstoff und Kupfer.

Dabei ist der Ordinatenmaßstab für jede einzelne Kurve entsprechend ihrem zugeordneten K gedehnt worden.

Die Maxima (Normtemperaturen \tilde{T} nach LARENZ³⁾ sind gegenüber den Ergebnissen der Rechnungen reiner Metallplasmen bei geringen Metallgehalten weit nach höheren Temperaturen verschoben. Die absoluten Werte liegen dabei bis zum Faktor 3 höher als nach den Rechnungen im reinen Metallplasma. Bei bestimmten Mischungsverhältnissen können sogar zwei Maxima auftreten (s. Kurve 4 in Fig. 5).

Bei höheren Temperaturen und entsprechend höheren Ionisierungsstufen sowohl vom Metall als auch vom Füllgas spielen sich analoge Vorgänge bei der Ionisierung ab. Ein Beispiel dafür liegt in der Arbeit von SPÄTH und KREMPL¹⁴ am System Stickstoff—Kohlenstoff vor. Hierbei treten allerdings die Erscheinungen schwächer auf, da die Ionisierungsspannungen der entsprechenden N- und C-Ionen nur wenig differieren.

Die Hinzufügung weiterer Metalle bringt große Veränderungen der Ionisierungsgleichgewichte in der Richtung hervor, daß stets gegenseitige Hemmung der Ionisierung durch Elektronenlieferung auftritt. Dementsprechend verschieben sich auch die Intensitätsverhältnisse von Spektrallinien der Metalle. Darauf ist von CALKER¹⁵ aufmerksam gemacht worden.

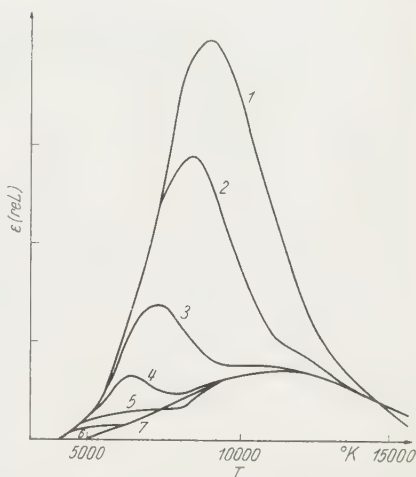


Fig. 5. Temperaturverlauf des Emissionskoeffizienten der Cu I-Linie 5105,54 Å im Zweistoffplasma Stickstoff—Kupfer. Indizierung der Kurven s. Fig. 2

¹⁴ SPÄTH, H., u. H. KREMPL: Z. angew. Phys. **12**, 8 (1960).

¹⁵ CALKER, J. VAN: Phys. Verh. **10**, 63 (1959).

Daß die Benutzung verschiedener Füllgase die Linienintensitäten von Metallen beeinflußt, ist bekannt¹⁶. Hierbei spielen aber offenbar noch andere Größen, wie die Temperaturleitfähigkeit des Füllgases eine Rolle.

Außerdem überlagert sich zu den dargelegten Erscheinungen bei großen Temperaturgradienten ein Entmischungseffekt, wie er von FRIE und MAECKER¹⁷ aus der Thermodynamik irreversibler Prozesse abgeleitet worden ist. Das in¹⁷ zugrunde gelegte System Füllgas-Reaktionsgas entspricht genau dem Modell dieser Ausführungen. Die Entmischung wirkt der Ionisierungspufferung entgegen, wird sie aber im allgemeinen in spektroskopischen Lichtquellen nicht vollständig aufheben können.

¹⁶ EICHINGER, R., u. H. KREMPL: Z. angew. Phys. **12**, 461 (1960).

¹⁷ FRIE, W., u. H. MAECKER: Z. Physik **162**, 69 (1961).

Groupe de Recherches de l'Association EURATOM - CEA sur la Fusion.
Service de Recherche sur la Fusion Contrôlée, Fontenay-aux-Roses/Seine-Frankreich

Zur formelmäßigen Darstellung der Ionisierungsquerschnitte gegenüber Elektronenstoß

Von

H.-W. DRAWIN

Mit 6 Figuren im Text

(Eingegangen am 9. Juni 1961)

An empirical analytical expression for the ionisation cross sections is given which is in very good agreement with experimentally measured cross sections, and which is able to give a large part of the ionisation curves as a function of the energy of the impacting electrons. For high electron energies the formula is in agreement with the quantum mechanical expression for the ionisation cross section (Born-Bethe-formula).

A. Einleitung

Die Kenntnis der absoluten Größe und des relativen Verlaufs der Ionisierungsquerschnitte als Funktion der Elektronenenergie ist insbesondere dann von Wichtigkeit, wenn Plasmazustände bei Abwesenheit thermischen Gleichgewichtes berechnet werden sollen. Wir stießen unter anderem auf dieses Problem bei der Deutung der in H- und Li-Bögen geringer Teilchendichte und hoher Stromstärke auftretenden Phänomene. Wegen der stark unterschiedlichen Ionisierungsenergien für die verschiedenen Ionisierungsstufen und wegen der relativ hohen Elektronenenergien im Plasma muß der Ionisierungsquerschnitt praktisch vollständig bekannt sein, wenn eine genaue Aussage über den Plasmazustand gemacht werden soll. Da Formeln, die den gesamten Verlauf der Ionisierungskurven wiedergeben könnten, zur Zeit leider nicht vorliegen, wurde nach einer Beziehung gesucht, die in guter Übereinstimmung mit bisher vorliegenden Messungen ist und daher auch auf noch nicht gemessene Querschnitte anwendbar sein dürfte, wie z. B. für Lithium, aber auch für andere Elemente.

B. Bisher vorliegende Formeln

Für begrenzte Energiebereiche der stoßenden Elektronen wurden von verschiedenen Autoren Formeln für den Ionisierungsquerschnitt angegeben. So hat J. J. THOMSON¹ auf Grund der klassischen Elektrodynamik eine Formel für den Ionisierungsquerschnitt abgeleitet. Danach gilt

$$q_{in} = \xi_n \frac{\pi e_0^4}{E} \left(\frac{1}{E_{in}} - \frac{1}{E} \right) \quad (1)$$

¹ THOMSON, J. J.: Philos. Mag. **23**, 449 (1912).

mit E = Energie der stoßenden Elektronen,

E_{in} = Ionisierungsenergie des gestoßenen Teilchens,

ξ_n = Anzahl energetisch gleichberechtigter Elektronen in einer Schale, von der aus die Ionisierung erfolgt.

Bei Mehrfachionisation stimmt die optische Ionisierungsenergie E_i häufig nicht mehr mit dem sog. „Erscheinungspotential“ (threshold-energy) der Ionen überein. In Gl. (1) und auch in die folgenden Gleichungen

ist dann das „Erscheinungspotential“ der betreffenden Ionensorte einzusetzen. (Vgl. dazu ².) Damit ein Elektron den Atom- (Ionen)-Verband verlassen kann, muß stets $E \geq E_{in}$ sein.

Bezieht man mit ELWERT die Energie E auf die Ionisierungsenergie E_{in} , setzt also $U = E/E_{in}$, und führt man weiterhin die Ionisationsenergie E_i^H des Wasserstoffatoms in der ersten Bohrschen Bahn a_0 ein, so erhält man aus Gl. (1) für den Ionisierungsquerschnitt

$$q_{in} = 4\xi_n \pi a_0^2 \left(\frac{E_i^H}{E_{in}} \right)^2 \times \left\{ \frac{U-1}{U^2} [\text{cm}^2] \right\} \quad (2)$$

mit $\pi a_0^2 = 8,79 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$.

Das relativ scharfe Maximum dieses klassischen Ionisationsquerschnitts wird bei $E = 2 \cdot E_{in}$ erreicht, während die Messungen im allgemeinen ein flacheres Maximum bei $E \cong 4 \cdot E_{in}$ aufweisen (s. hierzu Fig. 4). Für kleine Werte E bzw. U werden die q_{in} -Werte nach Gl. (2) zu groß, für große Werte E bzw. U zu klein wiedergegeben.

Die klassische Theorie wurde von THOMAS³ und ferner von WEBSTER, HANSEN und DUVECK⁴ verfeinert, indem die Bewegung der Elektronen in ihrer Bahn, die Vergrößerung der Elektronengeschwindigkeit infolge der Kernanziehung und die Dichtezunahme der einfallenden Elektronen

² TATE, J. T., and P. T. SMITH: Phys. Rev. **46**, 773 (1934).

³ THOMAS, L. H.: Proc. Cambridge Philos. Soc. **23**, 829 (1927).

⁴ WEBSTER, D. L., W. W. HANSEN and F. B. DUVECK: Phys. Rev. **43**, 839 (1933).

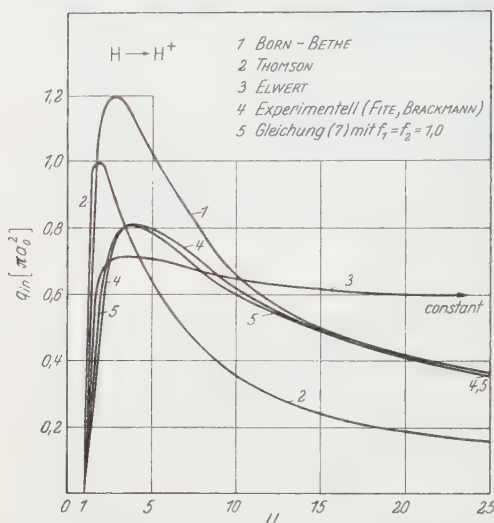


Fig. 1. Ionisierungsquerschnitt für atomaren Wasserstoff H. Kurve 1: Born-Bethe-Approximation; Kurve 2: Thomson-Formel; Kurve 3: empirisch nach ELWERT; Kurve 4: experimentell nach FITE und BRACKMANN; Kurve 5: empirisch nach Gl. (7)

in der Nähe der Schalen durch die veränderte Ablenkung am Kern mit berücksichtigt wurde. Es ergibt sich dann als Ionisierungsquerschnitt

$$q_{in} = 4\xi_n \pi a_0^2 \left(\frac{E_i^H}{E_{in}} \right)^2 \frac{U-1}{U^2} \left[1 + \frac{2}{3} T \frac{U+1}{U} \right] \quad (3)$$

mit T = Verhältnis der kinetischen Bahnenergie zur Ionisierungsenergie ($T \cong 1$).

Diese Formel liefert zwar für große Werte U bessere Querschnitte als Gl. (2), gleichzeitig werden aber die Abweichungen von den experimentellen Werten im Bereich $1 < U < 5$ größer.

Eine empirische Formel, die auf der klassischen Thomsonschen Formel aufbaut, wurde kürzlich von ELWERT⁵ angegeben. ELWERT konnte zeigen, daß für kleine Elektronenenergien $1 \leq U \leq 2$ der Ionisationsquerschnitt durch folgende Formel befriedigend wiedergegeben werden kann

$$q_{in} = 2\xi_n \pi a_0^2 \left(\frac{E_i^H}{E_{in}} \right)^2 \frac{U-1}{U^2} [1 + 0,3(U-1)]. \quad (4)$$

Das sehr flache Maximum liegt nach dieser Formel bei $U = 3,5$ in guter Übereinstimmung mit den Experimenten. Für $U > 5$ bleibt q_{in} jedoch nach Gl. (4) konstant, während die Messungen einen ziemlich starken Abfall nach höheren Elektronenenergien zeigen. Für den Bereich $1 \leq U < 3$ stellt Gl. (4) jedoch eine sehr gute Approximation dar. Sie wird im allgemeinen bei astrophysikalischen Berechnungen angewendet, da hierbei der Anteil der Elektronen, die eine größere Energie als $U \cong 2-5$ haben, exponentiell mit U abnimmt und daher diese Elektronen nur noch einen vernachlässigbaren kleinen Anteil an der Gesamtionisierung ausmachen.

Von MARGULIS⁶ wird für den Ionisierungsquerschnitt folgende Näherung angegeben

$$q_{in} = a_1 (E - E_{in}) e^{-\frac{1}{b_1} (E - E_{in})} \quad (5)$$

mit a_1, b_1 = näher zu bestimmende Konstanten.

⁵ ELWERT, G.: Z. Naturforsch. 7a, 432 (1952).

⁶ MARGULIS, N.: Phys. Z. Sowjet. 5, 407 (1934).

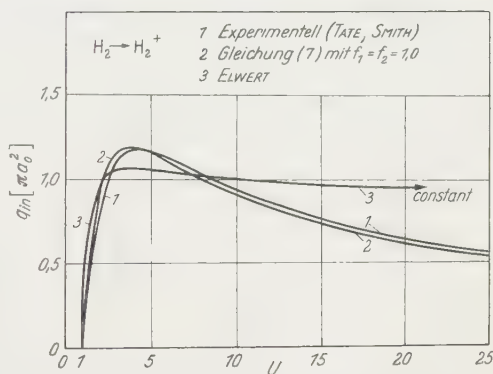


Fig. 2. Ionisierungsquerschnitt für molekularen Wasserstoff H_2 . Kurve 1: experimentell nach TATE und SMITH; Kurve 2: empirisch nach Gl. (7); Kurve 3: empirisch nach ELWERT

Versucht man Gl. (5) mit den experimentell gemessenen Kurven zur Deckung zu bringen, so gelingt dieses nur einigermaßen im Bereich $1 < U < 10$. Für Werte $U > 10$ gibt Gl. (5) um Größenordnungen zu kleine Werte infolge des starken Abfalles der e -Funktion. Außerdem ist die Bestimmung der Konstanten a und b an das Vorhandensein experimenteller Werte geknüpft. (Siehe ebenfalls ^{7,7a}.)

Wellenmechanische Berechnungen wurden von BETHE⁸ nach der Methode der Bornschen Näherung durchgeführt und ergeben die Beziehung

$$q_{in} = \frac{\pi e_0^4}{E \cdot E_{in}} b_{nl} \ln \frac{4E}{B_{nl}} \quad (6)$$

mit $B_{nl} \cong 1,6 E_{in}$

$$b_{nl} = 2 \int |z_{0k}|^2 dk \cong 0,2 \dots 0,6 \text{ für die inneren Schalen}$$

$$z_{0k} = \int \psi_0 z \psi_k^* d\tau; \quad \psi_0, \psi_k = \text{Eigenfunktionen}$$

$$k = \frac{2\pi}{\lambda} = \text{Wellenzahl der Elektronen.}$$

Vorraussetzungsgemäß (Bornsche Approximation) kann Gl. (6) jedoch nur eine befriedigende Übereinstimmung mit gemessenen Werten für solche Energien liefern, die ein Vielfaches der Ionisationsenergie betragen^{*}.

Von SODEN⁹ wurde die Bornsche Näherung so abgeändert, daß sie auch für speziell durchgerechnete Konfigurationen q_{in} -Werte bei kleineren Elektronenenergien ergibt. Weitere Rechnungen dieser Art stammen von BURHOP¹⁰. Halbempirische Berechnungen, bei denen der Ionisationsquerschnitt nach der Born-Bethe-Approximation mit dem Ionisationsquerschnitt für Photo-Ionisation verknüpft wird, liegen von BATES und SEATON^{11,12} vor.

^{*} Eine empirisch abgeänderte Form der Gl. (6) wurde von DE LA RIPELLE¹³ gegeben und lautet

$$q_{in} = 4\pi a_0^2 \left(\frac{E_i^H}{E_{in}} \right)^2 \xi_n \frac{1}{k} \cdot \frac{\ln \lambda U}{U - \varphi}.$$

Werte für die Konstanten λ , k und φ siehe ¹⁴.

⁷ KAPZOW, N.A.: Elektrische Vorgänge in Gasen und im Vakuum, S. 157. Berlin: Deutscher Verlag der Wissenschaften 1955.

^{7a} DUSHMAN, S.: Scientific Foundation of Vacuum Technique, S. 353. John Wiley & Son 4. Aufl., 1958.

⁸ BETHE, H.: Ann. Physik **5**, 325 (1930).

⁹ SODEN, D.: Ann. Physik **19**, 409 (1934).

¹⁰ BURHOP, E.H.S.: Proc. Cambridge Philos. Soc. **36**, 43 (1940).

¹¹ BATES, D.R., and M. J. SEATON: Monthl. Notices Roy. Astron. Soc. **109**, 698 (1949).

¹² SEATON, M. J.: Proc. Phys. Soc., Lond. A **67**, 927 (1954). — Phys. Rev. **113**, 814 (1959).

¹³ DE LA RIPELLE, F.: J. Phys. Radium **10**, 318 (1949).

¹⁴ KNORR, G.: Z. Naturforsch. **13a**, 941 (1958).

C. Approximation experimenteller Werte

Experimentelle Bestimmungen der Ionisierungsquerschnitte in Abhängigkeit von der Energie der stoßenden Elektronen sind für eine Reihe von Elementen durchgeführt worden, so unter anderem für H^{15} , H_2^{16} , die Edelgase $He^{17,18,19}$, $Ne^{17,20}$, A^{20} , Kr^2 , Xe^2 , die Alkalien $Na^{2,21}$, $K^{2,21}$, Rb^2 ; Cs^2 , ausgenommen Li. Ferner für O^{22} , $Hg^{23,24}$, die K -Schalen von Ag^4 und von Ni^{25} sowie von einer Reihe weiterer Gase und Dämpfe wie O_2 , N_2 , NO , CO , NH_3 und Moleküle der Struktur C_xH_y . (Zusammenfassende Tabellen siehe z. B. ²⁶.)

Diese gemessenen Ionisierungsquerschnitte sind leider immer nur mit den oben angegebenen Formeln in einem begrenzten Energiebereich zur Deckung zu bringen. Dies wirkt sich natürlich dann besonders nachteilig auf weitere Rechnungen aus, wenn verschiedene Ionisierungsstufen eines Elementes mit stark unterschiedlichen Ionisierungsenergien bei Mehrfachionisation vorliegen. Es wurde daher versucht, eine formelmäßige Darstellung des Verlaufes der Ionisierungskurven zu finden, die in guter Übereinstimmung mit den Experimenten von kleinsten bis zu sehr hohen Energien der einfallenden Elektronen ist.

Empirisch wurde gefunden, daß die experimentellen Meßwerte fast ausnahmslos in ein Kurvenfeld passen, dessen Gleichung wie folgt lautet

$$q_{in} = 2,66 \xi_n \pi a_0^2 \left(\frac{E_i^H}{E_{in}} \right)^2 f_1 \frac{U-1}{U^2} \ln 1,25 f_2 U \quad [cm^2] \quad (7)$$

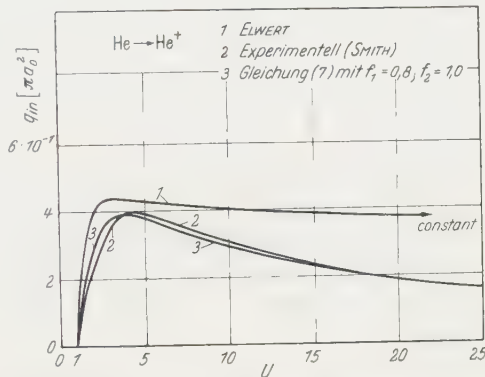


Fig. 3. Ionisierungsquerschnitt für Helium. Kurve 1: empirisch nach ELWERT; Kurve 2: experimentell nach SMITH; Kurve 3: empirisch nach Gl. (7)

- ¹⁵ FITE, W.L., and R.T. BRACKMANN: Phys. Rev. **112**, 1141 (1958).
- ¹⁶ TATE, J.T., and P.T. SMITH: Phys. Rev. **39**, 270 (1932).
- ¹⁷ SMITH, P.T.: Phys. Rev. **36**, 1293 (1930).
- ¹⁸ HANLE, W., u. D. RIEDE: Z. Physik **133**, 402 (1952).
- ¹⁹ STANTON, H.E., and J.E. MONAHAN: Phys. Rev. **119**, 711 (1960).
- ²⁰ BLEAKNEY, W.: Phys. Rev. **36**, 1303 (1930).
- ²¹ FUNK, H.: Ann. Physik **4**, 149 (1930).
- ²² FITE, W.L., U. and R.T. BRACKMANN: Phys. Rev. **113**, 815 (1959).
- ²³ BLEAKNEY, W., and L.G. SMITH: Phys. Rev. **49**, 402 (1936).
- ²⁴ NOTTINGHAM, W.B.: Phys. Rev. **55**, 203 (1939).
- ²⁵ POCKMANN, L.T.: Phys. Rev. **71**, 330 (1947).
- ²⁶ LANDOLT-BÖRNSTEIN: Tabellenwerk, Bd. 1, Teil 1, S. 345 ff. Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer 1955.

mit $f_1 = 0,70 \dots 1,3$; im allgemeinen $f_1 \cong 1,0$

$f_2 = 0,80 \dots 3,0$; im allgemeinen $f_2 \cong 1,0$.

Für hohe Energien ($U > 15$) stimmt Gl. (7) funktionell mit dem Verlauf der wellenmechanischen Lösung Gl. (6) überein, während für kleine Energien ($1 \leq U \leq 4$) die Thomson-Formel mit dem Logarithmus als Korrektionsfaktor herauskommt, wodurch gerade die zu hohen Werte nach der Thomson-Formel im Bereich $1 \leq U \leq 4$ auf das richtige Maß verkleinert werden. Das flache Maximum nach Gl. (7) wird für $f_1 = f_2 = 1,0$

bei $U = 4,1$ in guter Übereinstimmung mit den Experimenten erreicht. Für Werte $f_2 > 1$ verschiebt sich das Maximum zu kleineren Werten $U < 4,1$, außerdem wird der Kurvenabfall im Gebiet des Maximums etwas steiler; das Umgekehrte gilt für $f_2 < 1$. Der Faktor f_2 läßt somit eine Angleichung an die Ionisationskurven höherer Ionisationsstufen zu, bei denen das Maximum bekanntlich wegen der weitreichenden Coulomb-Felder

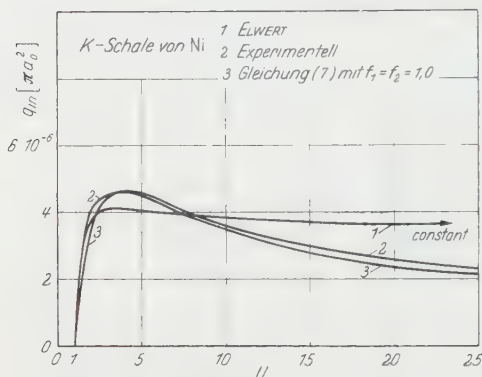


Fig. 4. Ionisationsquerschnitt für die K-Schale von Ni. Kurve 1: empirisch nach ELWERT; Kurve 2: experimentell nach POCKMANN et al.; Kurve 3: empirisch nach Gl. (7)

etwas nach kleineren Werten U vorgezogen wird^{26a, 26b, 26c}, bei gleichzeitig steilerem Kurvenabfall in der Nähe des Maximums.

In Fig. 1–4 werden einige experimentell erhaltene Kurven mit dem durch Gl. (7) gegebenen Kurvenverlauf verglichen, die die gute Übereinstimmung zeigen. Diese Übereinstimmung bleibt auch noch für Werte $U > 25$ erhalten, soweit man auf experimentelle Werte zurückgreifen konnte, die bis zu so hohen Energien reichen. Erwähnt sei, daß für Ne und Hg nur dann nach Gl. (7) mit den Experimenten Übereinstimmung erzielt wird, wenn $f_2 \cong 0,55$ wird. Dies liefert für Energien $U < 1,42$ negative Werte für q_{in} , so daß Gl. (7) in diesem Falle erst ab $U = 1,42$ anwendbar wird. Dies scheint jedoch eine Ausnahme zu sein. Eine sehr gute Übereinstimmung wird übrigens auch für Argon erzielt,

^{26a} HARRISON, M.F., K.T. DOLDER and P.C. THONEMANN: V. Internat. Konferenz Ionisationsphenomane in Gasen, München 1961; sowie Harwell-Report HL 61/4153.

^{26b} MALIK, F.B., u. E. TREFFTZ: Z. Naturforsch. **16a**, 583 (1961).

^{26c} PETERSON, P.: V. Internat. Konferenz Ionisationsphenomane in Gasen, München 1961.

obwohl dieses Atom bereits einen recht komplizierten Aufbau der Elektronenschalen zeigt. Setzt man für Argon I $f_1 = f_2 = 1,0$, so stimmen die nach Gl. (7) berechneten Werte ebenfalls im Rahmen der Meßgenauigkeit mit den experimentellen Werten überein.

Die Anwendung der Gl. (7) auf die verschiedenen Ionisierungsstufen von Li, an dem wir besonders interessiert sind, führt zu Ionisierungsquerschnitten, die graphisch in Fig. 5 dargestellt sind. Dabei ist der Ionisierungsquerschnitt, der vom angeregten metastabilen Grundzustand des Ortho-Li herrührt, ebenfalls mit eingezeichnet. Es sei erwähnt, daß die absolute Größe der q_{in} -Werte für das neutrale Li-Atom befriedigend mit Messungen übereinstimmt, die von FUNK²¹ an Na und K gemacht wurden, wobei Werte für q_{in} von $8 \cdot 10^{-16}$ bzw. $3 \cdot 10^{-16}$ cm² im Maximum der Kurven gemessen wurden, während wir für Li $q_{in} = 4,6 \cdot 10^{-16}$ cm² erhalten. Nach MASSEY und BURHOP²⁷ sollten die Funkschen Messungen allerdings nur als Anhaltspunkt für die Größenordnung genommen werden. (Starke Korrektur wegen Restgas-Ionisierung.) Ein strenger Vergleich der q_{in} -Werte für Li mit der von SEATON angegebenen Approximation²⁸ ist ebenfalls nicht möglich, da die entsprechenden Rechnungen auf einer ziemlich willkürlichen Annahme über die Größe des Photoionisationsquerschnittes basieren, worauf die Verfasser auch besonders hinweisen.

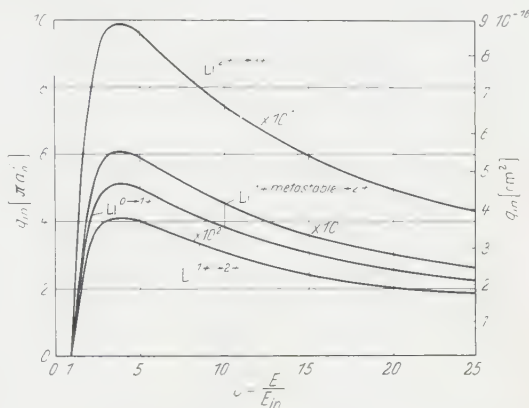


Fig. 5. Ionisierungsquerschnitte für Li, für die verschiedenen Ionisierungsstufen berechnet nach Gl. (7)

D. Gesamtionisierung

Zur Ermittlung der Gesamtionisierung S_{in} hat man die Ionisierungskurve mit der Geschwindigkeitsverteilung $v f(v) dv$ der Elektronen zu multiplizieren und zu integrieren

$$S_{in} = \int_{U_{in}}^{\infty} q_{in}(U) v f(v) dv. \quad (8)$$

²⁷ MASSEY, H. S. W., and E. H. S. BURHOP: Electronic and Ionic Impact Phenomena, S. 40. Oxford: Clarendon Press 1956.

²⁸ McDOWELL, M. R. C., and G. PEACH: Phys. Rev. **121**, 1383 (1961).

Besitzen die stoßenden Elektronen eine Maxwell-Verteilung der Temperatur T_e , so folgt aus Gl. (7) und (8) der Ausdruck

$$S_{in} = a \int_{u'_{in}}^{\infty} \left[\left(1 - \frac{u'_{in}}{u'} \right) e^{-u'} \ln 1,25 f_2 \frac{u'}{u'_{in}} \right] du' \quad (9)$$

mit $E = u' \cdot k \cdot T_e$; $E_{in} = u'_{in} \cdot k \cdot T_e$; $v = \sqrt{\frac{2 \cdot k \cdot T_e}{m_e}} \cdot \sqrt{u'}$

$$U = \frac{u'}{u'_{in}}; \quad a = 5,32 f_1 \pi a_0^2 \cdot \xi_n \left(\frac{E_i^H}{E_{in}} \right)^2 \cdot u'_{in} \sqrt{\frac{2 \cdot k \cdot T_e}{\pi \cdot m_e}}.$$

Das Integral läßt sich nicht in einfacher analytischer Form darstellen. Es wurde numerisch-graphisch berechnet und ist in Fig. 6 als Funktion

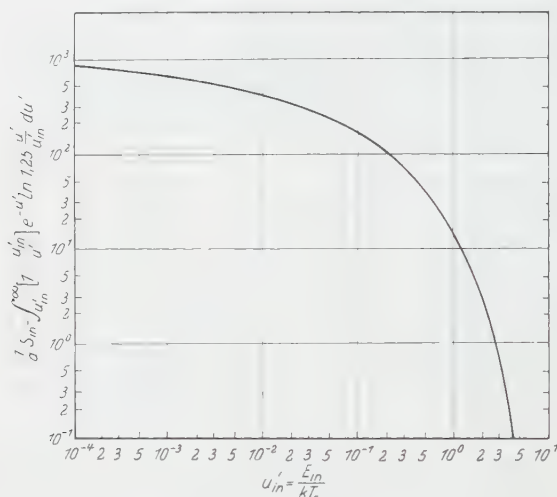


Fig. 6. Gesamtionisierungskoeffizient $\frac{1}{a} S_{in}$, der sich aus Gl. (7) ergibt

von u'_{in} für $f_2 = 1,0$ dargestellt. Für eine bekannte Elektronentemperatur und Ionisierungsenergie läßt sich damit die Gesamtionisierung leicht erhalten.

Die Gl. (7) hat bezüglich der Berechnung der Gesamtionisierung S_{in} den großen Vorteil, daß praktisch für alle Elemente $f_2 = 1,0$ ist. Die Angleichung an die experimentellen Meßwerte erfolgt dann durch den Faktor $0,7 < f_1 < 1,3$, sofern Meßwerte vorliegen. Man kommt somit mit nur einer einzigen Kurve $\frac{1}{a} S_{in}$ zur Berechnung der Gesamtionisierung für alle Elemente aus.

Abschließend sei bemerkt, daß sich auch ein großer Teil der Anregungsquerschnitte gegenüber Elektronenstoß durch eine Gleichung der Form Gl. (7) darstellen läßt. In diesem Falle sind die konstanten Faktoren etwas abzuändern, und an Stelle von E_{in} ist das jeweilige Anregungspotential E_{an} des betreffenden Überganges zu setzen. E_{an} kann optischen Messungen entnommen werden, welches für E_{in} nicht mehr zutrifft, wie bereits in Abschn. B erwähnt wurde. Da insbesondere das in die Gleichung für den Ionisierungsquerschnitt eingehende E_{in} oft für höhere Ionisationsstufen nicht genau bekannt ist, so ist damit zur Zeit bei der Berechnung nichtthermischer Zustände noch eine weitere Fehlerquelle vorhanden, die zu nicht unbeträchtlichen Fehlern führen kann (vgl. z. B. 2). Neben der Absolutmessung der q_{in} ist daher die Festlegung der E_{in} für die verschiedenen Ionisierungsstufen sehr wichtig.

Aus dem Physikalischen Institut der Technischen Hochschule Darmstadt

Lichtmikroskopie mit mechanischer Vorvergrößerung

Von

E. MENZEL und K. HOHLFELD

Mit 6 Figuren im Text

(Eingegangen am 19. Juni 1961)

By mechanically stretching a rubber replica prior to examination, the limits of resolution of the light microscope (according to Abbe) may be surpassed without the expenditure of any surplus energy. Replica and stretching can be described by a relief transfer function similar to that used in the optical transfer theory. This function was attained from the transfer of a step of mica. It is possible to describe the process as a linear transfer channel within the limits given.

1. Leistungsgrenzen der Optik

In der Optik erscheint seit einiger Zeit die grundsätzliche Bedeutung der klassischen Auflösungsgrenzen fraglich. WOLTER zeigte für die modernste Formulierung dieser Grenzen, das Expansions-Theorem, daß dessen Beweis streng nur für den Grenzfall großer Objektfelder gilt¹; WOLTER gab an, wie durch Einschränkung des Objektfeldes die Auflösungsgrenze verbessert werden kann². Weiter ergab sich ein Widerspruch³ zwischen dem Unsicherheitsprinzip von INGELSTAM⁴ und der Auflösungsgrenze, wie sie etwa von ABBE formuliert wurde. Dieses Prinzip war zunächst nur zur Wiedergabe von Erfahrungen der Interferenzmikroskopie aufgestellt worden; danach wird die Auflösung für Lateralstrukturen schlechter, wenn die Auflösung für Tiefen- oder Phasenstrukturen durch die Anwendung von Mehrstrahl-Interferenzen gesteigert wird. Die Auflösungsgrenze Δx für eine Lateralstruktur wird verknüpft mit der Auflösungsgrenze Δz für die Tiefenstruktur durch die Beziehung $\Delta x \cdot \Delta z \geq N \cdot \lambda^2$. Dabei ist λ die Wellenlänge des verwendeten Lichts und N eine wenig von Eins verschiedene Konstante. Der Widerspruch zur Abbe-Grenze folgt aus der Umkehrung des Prinzips: Durch Vergrößerung von Δz , also durch einen Verzicht auf Tiefenauflösung, kann danach Δx kleiner gemacht werden als die klassische Schranke.

Das geschieht mit Hilfe einer mechanischen Dehnung der Struktur auf das V_m -fache. Bei der nachfolgenden Beobachtung der gedehnten

¹ WOLTER, H.: Optica Acta 7, 53 (1960).

² WOLTER, H.: Physica 26, 75 (1960), dort weitere Literaturhinweise.

³ MENZEL, E.: Naturwissenschaften 46, 105 (1959).

⁴ INGELSTAM, E.: Ark. Fysik 7, 309 (1953).

Struktur mit einem Mikroobjektiv der Apertur A ist eine auf das primäre Objekt bezogene Auflösungsgrenze von $\Delta x \geq \lambda/2 A V_m$ zu erreichen. Dabei wird außer der Mikroskopbeleuchtung keine weitere Energie verbraucht, denn die für die Dehnung aufgewendete Energie kann im Prinzip durch eine Entspannung der Probe nach der Beobachtung wiedergewonnen werden. Über eine erste Realisierung dieses Gedankens wurde schon berichtet³. Inzwischen gelang es, mit einem verbesserten Verfahren die Leistungsgrenze der Lichtmikroskope mit Sicherheit zu übertreffen. Dies und die Übertragungseigenschaften des Verfahrens im Sinne der Fourier-Transformation sind der Inhalt dieser Darstellung.

2. Das Verfahren und seine Leistung

Auf die Reliefstruktur oder einen Zwischenabdruck in horizontaler Lage wird eine Kautschuklösung aufgegossen, der ein Vulkanisationsmittel beigegeben ist*. Nach dem Verdunsten des Lösungsmittels wird die Kautschukfolie in heißem Wasser vulkanisiert; danach wird sie von der Probe abgezogen; sie ist etwa 0,25 mm dick und trägt das Relief des Objekts als Negativ⁵.

Für die Dehnung wird die Gummifolie luftdicht auf die kreisförmige Öffnung eines Vakuumkessels (Fig. 1) gespannt, so daß das Relief an der Unterseite liegt. Durch Unterdruck im Kessel wird die Folie auf das V_m -fache gedehnt; sie wird gegen eine Glasplatte gedrückt, die auf einem verstellbaren Stempel befestigt ist. Ein Tropfen Lacklösung, der vorher auf die Glasplatte gegeben worden war, übernimmt bei der Trocknung die Reliefstruktur der gedehnten Gummifolie als Positiv der ursprünglichen Struktur; der Lack haftet nach dem Ablösen der Folie an der Glasplatte; sein Relief kann nun mit einem Phasenkontrast- oder Interferenzmikroskop beobachtet und ausgemessen werden.

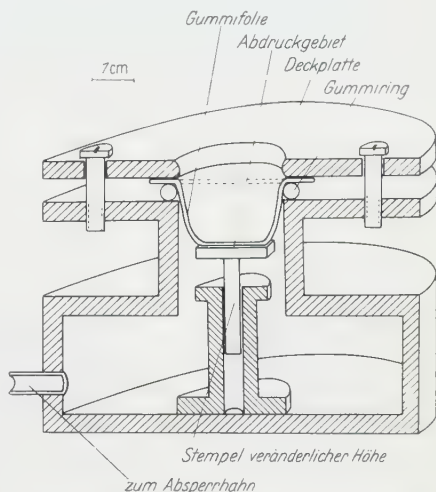


Fig. 1. Dehnung der Gummifolie durch Luftdruck und Herstellung des Lackabdrucks

* Herrn Dr. K. GRÄHLING von der Deutschen Dunlop Gummi Compagnie, Hanau, danken wir für seinen Rat und für eine große Anzahl von Lösungen.

⁵ MENZEL, E.: J. Phys. Radium **22**, 22 S (1961).

Fig. 2 zeigt den Abdruck von einem geätzten Perlitschliff nach der mechanischen Vorvergrößerung. Streifenabstände von weniger als $0,1 \mu$ sind deutlich zu erkennen. Auch die Reproduzierbarkeit des Verfahrens

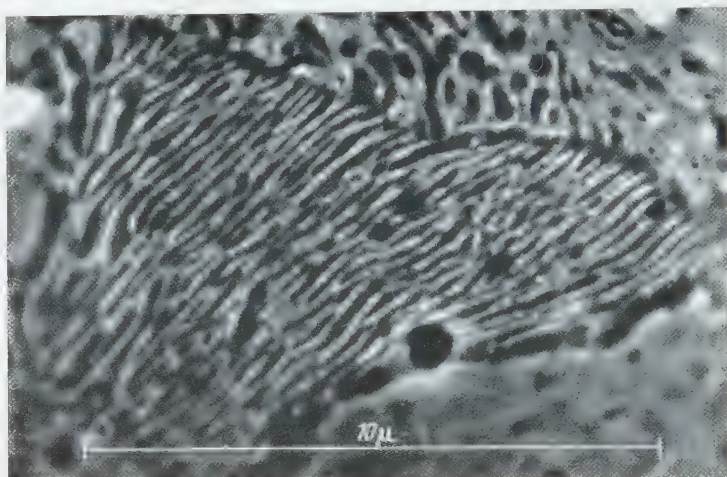


Fig. 2. Gedehnter Abdruck eines geätzten Perlitschliffs. $V_m = 2,9$

wurde an Perlit erprobt. Fig. 3a und b zeigen Abdrucke, die nacheinander von der gleichen Objektstelle genommen wurden. Zum Vergleich ist ein Kollodiumabdruck von derselben Objektstelle in Fig. 3c

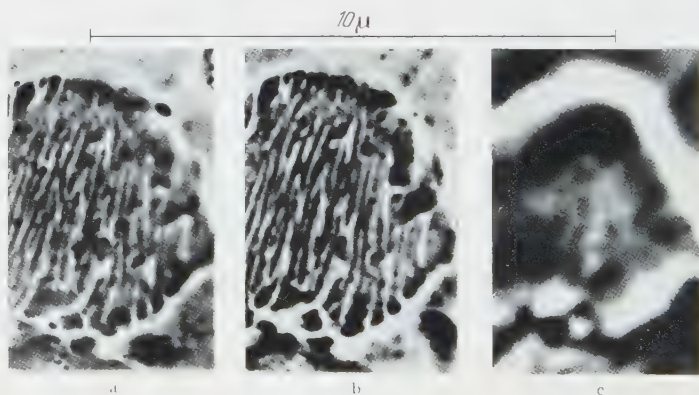


Fig. 3a - c. Geätzter Perlit im Phasenkontrastmikroskop mit Ölimmersion. a und b gedehnte Gummiaabdrucke mit $V_m = 2,9$ und $2,8$; c ungedehnter Kollodiumabdruck

wiedergegeben. Von der Elektronenmikroskopie her weiß man, daß die Auflösungsgrenze von solchen Abdrucken unter $0,01 \mu$ liegt; die Unschärfe des Vergleichsbildes rührt also nur von der Leistungsgrenze des Lichtmikroskopes her. Alle drei Teilbilder sind durch optische Nachvergrößerung auf den gleichen Maßstab gebracht.

Es ist denkbar, daß durch die Dehnung der Gummifolie Winkelverzerrungen entstehen. Abdrucke von in Glas geritzten Kreuzgittern zeigen jedoch, daß ihr rechter Winkel erhalten bleibt, wenn der abgedruckte Objektort in der Mitte der Kreisöffnung des Vakuumkessels lag. Durch Inhomogenitäten der Gummifolie und des Lacks entsteht bisher noch ein merkliches optisches Rauschen.

3. Dehnung und Einebnung des Reliefs

Laterale Dehnungen in den Richtungen x und y parallel zur Oberfläche der Gummifolie führen zu mechanischen Vergrößerungen V_x und V_y der Struktur. Bei gleichmäßiger Dehnung in beiden Richtungen gilt $V_x = V_y = V_m$. Diese laterale Dehnung bewirkt eine Abnahme der Folienstärke. Das Profil eines Reliefs in der Oberfläche der Folie wird entsprechend flacher; für die Profilhöhe z gilt dann $V_z < 1$.

Bei der Dehnung von Gummifolien erfolgt erfahrungsgemäß keine Volumenänderung⁶. Deshalb gilt $V_x \cdot V_y \cdot V_z = 1$. Die lateralen Auflösungsgrenzen für das gedehnte Objekt sind durch Wellenlänge und Apertur des verwendeten Mikroskops gegeben; es gilt $\Delta x' = \Delta y' \geq \lambda/2A$. Die Tiefenstruktur des gedehnten Objektes kann — etwa durch Interferenzen — auf $\Delta z'$ genau vermessen werden. Für das ungedehnte Objekt gelten die Auflösungsgrenzen $\Delta x = \Delta x'/V_x$, $\Delta y = \Delta y'/V_y$, $\Delta z = \Delta z'/V_z$. Analog zu einer von THORNTON⁷ vorgeschlagenen Erweiterung des Prinzips von INGELSTAM wird damit⁸:

$$\Delta x \cdot \Delta y \cdot \Delta z = \Delta x'/V_x \cdot \Delta y'/V_y \cdot \Delta z'/V_z = \text{const} \geq P \cdot \lambda^3.$$

Interessiert bei speziellen Objekten nur die Struktur in x -Richtung, so ist es zweckmäßig, das Objekt oder seinen Abdruck nur in dieser Richtung zu dehnen; dann bleibt $V_y \approx 1$. Nun wächst $\Delta z = \Delta z' V_x V_y$ nicht so stark an, wie es bei gleichmäßiger Dehnung geschähe. Verzichtet man auf Messungen in der z -Richtung, so ist dennoch ein kleines Δz erwünscht, denn dies bedeutet bei einer gegebenen Struktur des ursprünglichen Objekts einen größeren Kontrast bei der Abbildung der gedehnten Struktur.

Es ist auch denkbar, einen Gummiabdruck lateral zu schrumpfen, dann wird $V_z > 1$. So ist es prinzipiell möglich, durch Verzicht auf laterale Auflösung die Auflösung für Tiefenstrukturen über das bei Interferenzmikroskopen übliche zu steigern. Versuche in dieser Richtung verliefen noch unbefriedigend, denn die Schrumpfung von Abdrucken auf vorgedehnten Trägerfolien war mit sehr starkem Rauschen behaftet.

⁶ LE BRAS, J.: Grundlagen der Wissenschaft und Technik des Kautschuks. Stuttgart 1956.

⁷ THORNTON, B. S.: Optica Acta **4**, 41 (1957).

⁸ MENZEL, E.: 5. Conf. Internat. Commiss. Optics, Stockholm, 1959.

4. Die Eigenschaften der Reliefübertragung

Ähnlich wie in der Elektroakustik wurde es in der Optik üblich, die Übertragungseigenschaften eines Systems im Sinne der Fourier-Transformation darzustellen. Das ist bequem und übersichtlich, solange eine lineare Übertragung vorliegt, d.h., solange eine Verdopplung der Amplitude des Eingangssignals eine entsprechende Verdoppelung bei dem Ausgangssignal zur Folge hat. Eine Übertragungsfunktion kennzeichnet den Übertragungskanal. Sie gibt an, mit welchen Amplituden die Einzelfrequenzen des Objektspektrums übertragen werden.

Meist kann man sich zur Beschreibung des Kanals auf Objekte beschränken, die nur von einer Ortskoordinate (x) abhängen. In diesem Sinne wird das Objektrelief $z(x)$ durch die mechanische Vergrößerung in ein Relief $z'(x')$ übertragen durch die Transformation

$$z'(x') = \iint z(x) M(R) \times \\ \times \exp\{-2\pi i R(x'/V_x - x)\} dx dR.$$

R ist die Ortsfrequenz bei der Spektraldarstellung des Objekts. $M(R)$ ist die Reliefübertragungsfunktion; sie ist im Idealfalle eine Konstante. Wegen des oben besprochenen Verlustes an Relieftiefe infolge der Dehnung gilt im Idealfalle $M(R) = V_z = 1/V_x V_y$ und bei gleichmäßiger Dehnung $M(R) = 1/V_m^2$.

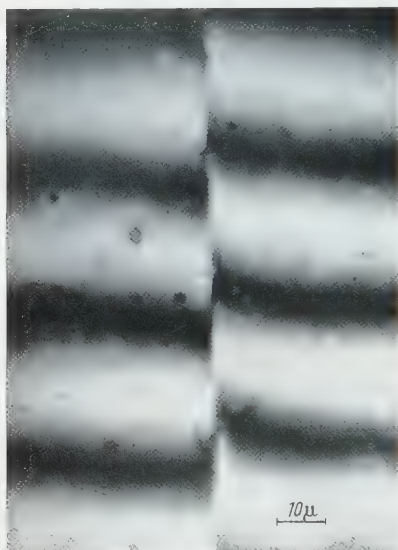


Fig. 4. Gedehnter Abdruck einer Glimmerstufe ($z = 1,0 \mu$) im Interferenzmikroskop. $V_m = 2,7$

Der wirkliche Verlauf von $M(R)$ läßt sich aus der Elastizitätstheorie gewinnen; zunächst wurde er experimentell bestimmt aus gedehnten Abdrucken von senkrecht abfallenden Glimmerstufen der Höhe z . Die Lackabdrücke wurden mit einem Interferenzmikroskop vom Michelson-Typ photographiert. Ein Beispiel zeigt Fig. 4. Aus der Streifenverschiebung ergibt sich an der Stufe eine Profilhöhe $z'(0)$. In der Entfernung x'_1 fällt die Profilhöhe auf das weiterhin konstante $z'(x'_1) = z'(\infty)$ ab (Fig. 5). Die Aufteilung an der Kante zeigt analog zu den Halos beim Phasenkontrast⁹ und bei Lackabdrucken¹⁰, daß $M(R)$ Bandfiltereigenschaften besitzt. Für kleine R ist M kleiner als für mittlere R . Die Meßgenauigkeit im Inter-

⁹ MENZEL, E.: In P. MOLLET, Optics in Metrology. Pergamon Press 1960 und Optik **15**, 460 (1958).

¹⁰ DEUBNER, B., H. KIMMEL u. W. ROLLWAGEN: Z. angew. Phys. **5**, 284 (1953).

ferenzmikroskop erlaubt nur eine grobe Festlegung von $M(R)$. Dafür ist der in Fig. 6 dargestellte Kurventyp ausreichend, seine Zusammensetzung aus zwei geraden Stücken erlaubt eine einfache Rechnung. Aus dem Faltungsprodukt der Fourier-Transformierten dieser für M angenommenen Funktion mit der Stufenfunktion des Objekts ergibt sich rechnerisch das Relief des gedehnten Abdrucks. Aus gemessenen Funktionswerten $z'(x')$ der Abdrucke können nun die für den Verlauf von $M(R)$ charakteristischen Funktionswerte errechnet werden.

Für Glimmerstufen der Höhe $z \leq 1 \mu$ und $V_m = 3$ wurde im Rahmen einer Meßunsicherheit von $\pm 10\%$ $z'(0)/z = V_z = 1/V_m^2$ gefunden; dadurch ist der horizontale Teil von M festgelegt. Weiter ergibt sich mit etwas größerer Meßunsicherheit $M(0) = z'(x'_1)/z = 1/2 V_m^2$. Der Knickpunkt der beiden Geraden liegt etwa bei $R_1 = 5 V_m / 2\pi x'_1 = 0,30 \mu^{-1}$. Ein Abfall von M bei hohem R ist nicht merklich, da der Abdruck der Kante steil verläuft. Beim praktischen Gebrauch überlagert sich der Kontrastübertragungsfunktion M die Übertragungsfunktion des benutzten Mikroskops; dessen Leistungsabfall bei höheren Raumfrequenzen wird durch die Bandfiltereigenschaft von M zum Teil kompensiert.

Für Glimmerstufen der Höhe $z > 1 \mu$ oder Dehnungen $V_m > 4$ ergeben sich andere Funktionen $M(R)$; von denen sind zwei gestrichelt in Fig. 6 eingezeichnet. Die Einebnung ist relativ stärker als in dem oben besprochenen Fall; außerdem ist jetzt die Kante merklich schräg gestellt, das bedeutet formal einen Abfall von M bei höheren Raumfrequenzen. Die Gummifolie kann noch auf $V_m = 6$ gedehnt werden, ohne zu zerreißen; dann zeigen sich aber Mikrorisse an den Kanten des Reliefs.

Sobald die Übertragungsfunktion M abhängig von der Objektstruktur wird, also bei höheren Glimmerstufen oder starker Dehnung, ist ein linearer Formalismus der Übertragung nicht mehr gerechtfertigt; dort verliert die Funktion $M(R)$ eigentlich ihren Sinn. Ein quantitativer Rückschluß vom gedehnten Abdruck auf das originale Relief ist nicht

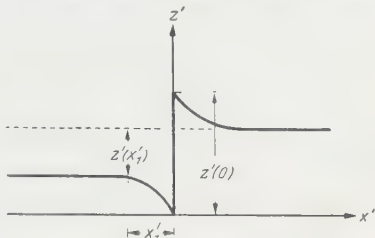


Fig. 5. Profil des gedehnten Abdrucks einer Stufe

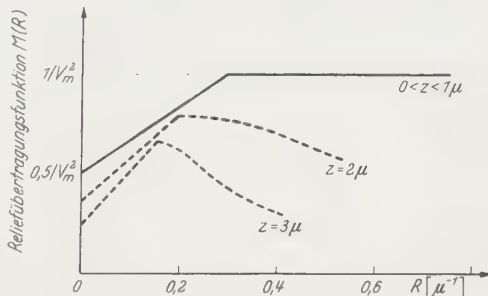


Fig. 6. Reliefübertragungsfunktion. Gestrichelt: Uneigentliche Übertragungsfunktionen bei nichtlinearem Verhalten

mehr durch eine ziemlich einfach zu handhabende lineare Transformation möglich. Für qualitative Untersuchungen ist jedoch das Verfahren auch hier noch wertvoll.

Die Nichtlinearität zeigt sich bei der mechanischen Vorvergrößerung unter den gleichen Umständen wie etwa beim Phasenkontrast, nämlich dann, wenn Objekte von gröberer Struktur übertragen werden sollen, oder wenn die Empfindlichkeit des Verfahrens sehr hoch getrieben werden soll. Das geschieht hier durch extreme Dehnung und beim Phasenkontrast durch starke Absorption im Phasenplättchen, mit der man sich dem Bereich der völlig nichtlinearen Dunkelfeldmikroskopie nähert⁹.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft danken wir für apparative Hilfsmittel.

Aus dem Physikalisch-Technischen Institut der Deutschen Akademie
der Wissenschaften zu Berlin, Bereich Elektronische Halbleiter

Zum Einfluß von Wasserstoff auf die Photoleitfähigkeit von CdS-Einkristallen

Von

M. ASCHE und F. ECKART

Mit 5 Figuren im Text

(Eingegangen am 12. Juli 1961)

Der Einfluß von Wasserstoff auf die Photoleitfähigkeit von CdS-Einkristallen wurde bei Zimmertemperatur und bei 500° K untersucht. Zur Deutung der Ergebnisse wurden ergänzende Messungen der Lebensdauer und der Beweglichkeit durchgeführt.

1. Einleitung

Der Einfluß von Wasserdampf^{1,2}, Helium³, feuchter Luft³, Cadmium- und Schwefeldampf⁴, Stickstoff^{2,5}, Sauerstoff^{2,6-9}, Kohlendioxyd² und Wasserstoff^{2,10,11} auf die Photoleitung von CdS-Einkristallen ist verschiedentlich untersucht worden. Ergänzend hierzu sollte der Einfluß einer Wasserstoff-Temperatur bei 500° K auf die Photoleitfähigkeit untersucht werden.

2. Versuchsdurchführung

Die CdS-Einkristalle (Abmessung $1 \times 0,3 \times 0,01$ cm³) werden ohne absichtliche Dotierung aus der Dampfphase gewonnen. Die Ergebnisse der spektralanalytischen Untersuchungen der für die Messungen verwendeten Herstellungschargen sind in der Tabelle zusammengestellt. Die Verunreinigungen sind zwar in willkürlichen, aber von Probe zu

¹ BUBE, R.H.: J. Chem. Phys. **21**, 1409 (1953).

² BERGER, H., K.W. BÖER u. E.H. WEBER: Z. Physik **158**, 501 (1960).

³ BUBE, R.H.: Phys. Rev. **101**, 1668 (1956).

⁴ KROEGER, F.A., H. J. VINK u. J. VAN DEN BOOMGARD: Z. phys. Chem. **203**, 1 (1954).

⁵ KROEGER, F.A., H. J. VINK u. J. VOLGER: Phil. Res. Rep. **10**, 39 (1955).

⁶ MUSCHEID, W.: Ann. Phys. **13**, 305 (1953).

⁷ LIEBSON, S.H., u. E. J. WEST: J. Chem. Phys. **23**, 977, 1732 (1955).

⁸ VORE, H.B. DE: Phys. Rev. **102**, 85 (1956).

⁹ KITAMURA, S.: J. Phys. Soc. Japan **15**, 2343 (1960).

¹⁰ ASCHE, M.: Einwirkung von Wasserstoff auf die Photoleitfähigkeit von CdS-Einkristallen. Diplomarbeit, Humboldt-Universität 1959.

¹¹ ASCHE, M., u. F. ECKART: Mbr. DAW Berlin **2**, 261 (1960).

Probe vergleichbaren Zahlenwerten von 1 bis 10 angegeben, wobei 1 gerade eben spektralanalytisch nachweisbar ist.

Andere als in der Tabelle angegebene Elemente waren nicht nachweisbar.

Gemessen wird in Spalt- und Sandwich-Anordnung. Die Leitfähigkeitsänderungen werden in Spaltanordnung nach der Vier-Spitzenmethode gemessen, und zwar bei einem Abstand der äußeren Elektroden (aufgedrückte Kontakte mit Goldspitzen) von 0,6 bis 0,7 cm und dem der beiden inneren von 0,2 bis 0,3 cm. Die Kontaktierung der Spaltzellen erfolgt entweder durch Aufdampfen von Gold oder durch Auf-

Tabelle. *Ergebnisse der spektralanalytischen Untersuchungen von CdS-Kristallen aus verschiedenen Herstellungschargen*

Charge	Nachgewiesene Elemente						
	B	Ca	Cu	Fe	Mg	Na	Si
246	—	1	2	1	1	1	2
250	—	1	—	—	—	—	1
268	1	—	—	—	—	—	1

Die Aufnahmen wurden am Quarz-Spektrographen Q 24 von Zeiss als Bogen- und Funkenspektren gemacht. Die Anregungsbedingungen waren die folgenden:

1. Wechselstrom Dauerbogen: 5 bis 10 A, Spaltbreite 20 μ , Elektrodenabstand 2,5 mm, Belichtungszeit 5 sec.

2. Funkenanregung: 12 kV, 3000 pF und 0,8 mH, Spaltbreite 30 μ , Elektrodenabstand 2,5 mm, Belichtungszeit 3×20 sec.

streichen einer Silberpaste. Vor der Goldbedampfung wird die Oberfläche wahlweise beglimmt. — Die Sandwich-Zellen werden vor der Kontaktierung mit halbdurchlässigen Goldaufdampfschichten grundsätzlich beglimmt. Die Größe der belichteten Fläche lag zwischen 1 bis $3 \cdot 10^{-2}$ cm².

Die Photoleitfähigkeit der Spaltzellen wird bei Zellenspannungen von 30 oder 100 V gemessen. Die Potentialdifferenz ΔU an den beiden inneren Sonden wird mit einem Einfadenelektrometer bestimmt. Das Verhältnis von Strom I zu ΔU wird als „Photoleitfähigkeit“ definiert. Diese ist wegen der Wellenlängenabhängigkeit der Eindringtiefe des Lichtes nicht auf Länge und Querschnitt normiert.

Der Kristall wird einschließlich Elektroden belichtet, und zwar wird der Lichtstrom einer mit Gleichstrom betriebenen HBO 200 im Bereich von 420 bis 570 bzw. bis 740 m μ spektral mit Zeiß-Interferenzfiltern zerlegt und die Intensität für jede Wellenlänge durch Drahtnetzfilter und Stromänderung auf 5×10^{14} Quanten/cm² sec (gemessen mit Vakuum-Thermoelement) eingeregelt.

Die Trägerlebensdauer wird nach STEVENSON und KEYES¹² bestimmt. Im Bereich der Ausläuferabsorption ($\lambda > 530 \text{ m}\mu$) wird das auf den Kristall auftreffende Licht einer HBO 200 durch Drehspiegel zerhackt und das Abklingen der Photoleitfähigkeit auf den e -ten Teil mit Verstärker (BV 8) und Oszillograph (OG 1-8) gemessen.

Trägerbeweglichkeit und Lebensdauer werden außerdem nach der Wechsellichtmethode^{13,14} berechnet. Die mit Gleichstrom betriebene XBO 100 wird mit einer Frequenz zwischen 1 und 10 kHz moduliert, und zwar beträgt der mit einer Vakuum-Photozelle gemessene Modulationsgrad 0,5 bis 5 %. Wegen der im Ausläufergebiet zu geringen Empfindlichkeit wird an der Absorptionskante des CdS (Zeiß-Interferenzfilter für $510 \text{ m}\mu$) mit 10^{14} Quanten/cm² sec eingestrahlt. Der Photostrom wird als Spannungsabfall an $1 \text{ M}\Omega$ mit Verstärker und Oszillograph gemessen.

3. Versuchsergebnisse

a) Photoleitfähigkeit. Die überwiegende Zahl der untersuchten CdS-Einkristalle zeigt bei Zimmertemperatur an Luft und im Vakuum von $p \leq 2 \times 10^{-6}$ Torr eine spektrale Verteilung der Photoleitfähigkeit, die dem Verlauf des optischen Absorptionskoeffizienten entspricht (Fig. 1 und 3; Kurve 1).

Durch Tempern der Kristalle bei 500° K im Vakuum steigt die Photoleitfähigkeit im Grundgittergebiet und in der Nähe der Absorptionskante allgemein an, und es bildet sich bei wiederholten Temperungen an der Absorptionskante ein Maximum aus (Fig. 2 und 4; Kurve 1; Fig. 3; Kurve 2).

Bei vorher im Vakuum bei 500° K getemperten Kristallen wird in Wasserstoffatmosphäre bei Zimmertemperatur die Photoleitfähigkeit herabgesetzt, und zwar besonders stark im Gebiet der Grundgitterabsorption (Fig. 1, 2 und 4; Kurve 2; Fig. 3; Kurve 3). Diese Einwirkung ist reversibel (Fig. 4), und zwar auch bei Sandwich-Kontaktierung (Fig. 5), bei der vermutlich wegen der Diffusion des Wasserstoffs durch die Goldaufdampfschicht der Wasserstoff-Einfluß erst nach längerer Einwirkungszeit merklich ist.

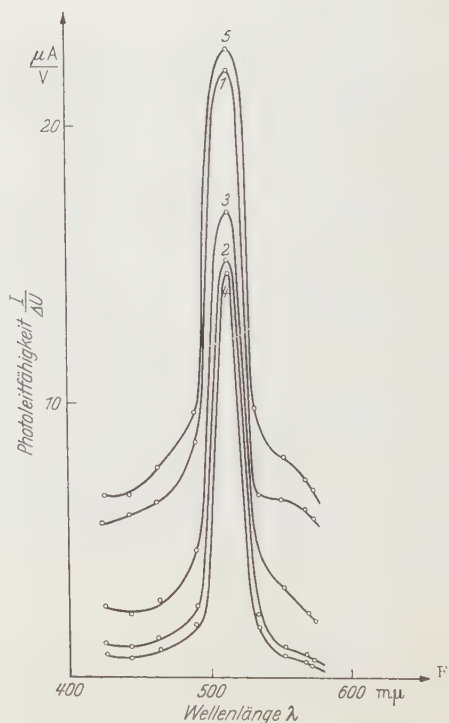
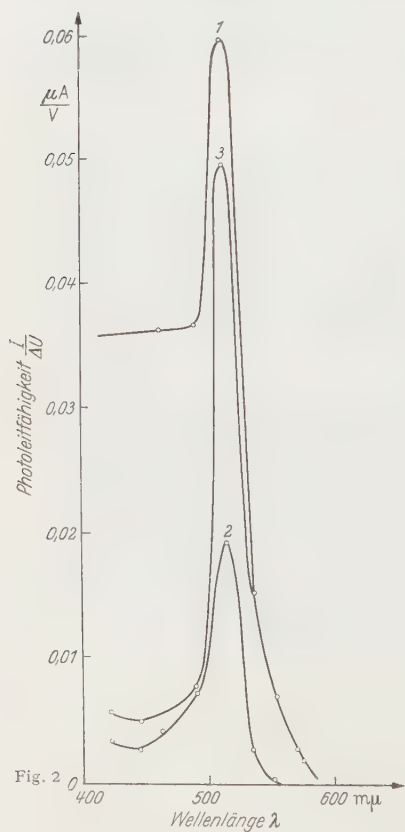
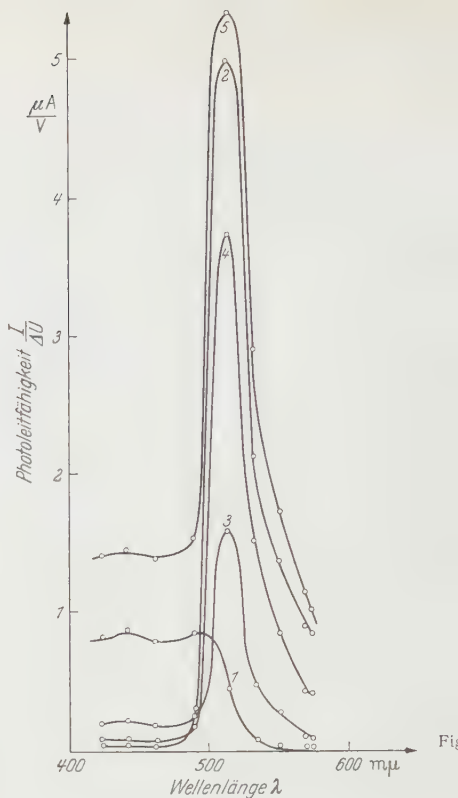
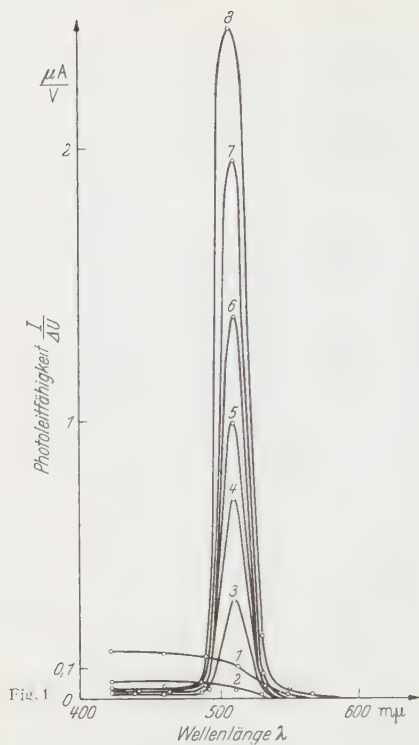
Temperungen der CdS-Einkristalle bei 500° K im strömenden Wasserstoff erhöhen die Photoleitfähigkeit, wobei das Maximum bei $510 \text{ m}\mu$ besonders ausgeprägt wird (Fig. 1; Kurve 3 bis 8; Fig. 2; Kurve 3; Fig. 3; Kurve 4 und 5). Der Einfluß ist aber nur zum Teil reversibel.

Dieses Verhalten ist offenbar unabhängig von der Kontaktierung. Durch die Beglimmung der Kristalle vor der Kontaktierung wird der Betrag der Photoleitfähigkeit allgemein um ein bis zwei Größenordnungen

¹² STEVENSON, D. T., and K. J. KEYES: J. Appl. Phys. **26**, 190 (1955).

¹³ FASSBENDER, J., u. H. LEHMANN: Ann. Phys. **6**, 215 (1949).

¹⁴ NIEKISCH, E. A.: Ann. Phys. **15**, 279, 288 (1955).



erhöht. Eventuelle Änderungen der Kontakteigenschaften beim Tempern werden dadurch eliminiert, daß an Stelle des Photostroms I das Verhältnis $I/\Delta U$ ausgewertet wird. Wenn Photospannungen auftreten, sind sie größenordnungsmäßig gegen die angelegte Spannung zu vernachlässigen.

b) Rekombinationszeit und Beweglichkeit. Die an CdS-Einkristallen gemessenen Rekombinationszeiten liegen zwischen 250 bis 750 μsec . Die nach beiden Methoden ermittelten Werte stimmen innerhalb der Meßgenauigkeit gut überein. Andere Autoren¹³⁻¹⁹ finden Werte zwischen 10^{-3} bis 10^{-6} sec.

¹⁵ BROSER, J., u. R. WARMINSKY: Ann. Phys. **7**, 289 (1950).
¹⁶ SMITH, R.W.: RCA. Rev. **12**, 350 (1951).
¹⁷ FASSBENDER, J., u. B. SERAPHIN: Ann. Phys. **10**, 374 (1952).
¹⁸ DIEDRICH, H.: Ann. Phys. **13**, 349 (1953).
¹⁹ BUBE, R.H.: J. Chem. Phys. **23**, 15, 18 (1955).

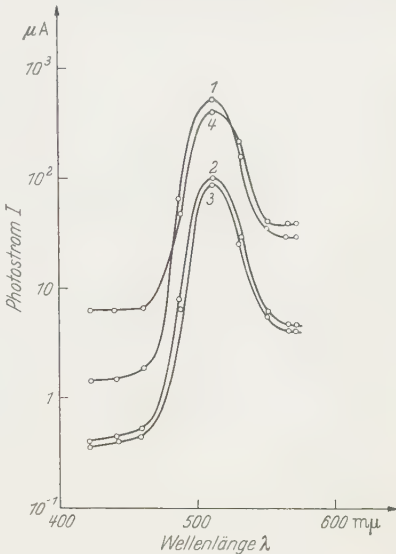


Fig. 5. Photostrom I in Abhängigkeit von der Wellenlänge des eingestrahnten Lichtes für einen in Sandwich-Anordnung kontaktierten CdS-Kristall. Kurve 1: Im Vakuum ($p \leq 2 \times 10^{-6}$ Torr.) Kurve 2: Nach mehrstündiger Wasserstoffeinwirkung. Kurve 3: Im Vakuum ($p \leq 2 \times 10^{-6}$ Torr.) Kurve 4: Im Vakuum nach Ausheizen bei 500° K

Fig. 1. „Photoleitfähigkeit“ $I/\Delta U$ (gemessen bei Zimmertemperatur) in Abhängigkeit von der Wellenlänge des eingestrahnten Lichtes für verschieden vorbehandelte CdS-Einkristalle in Spaltanordnung. Kristall aus Charge 246 ohne Beglimmung, mit Silber kontaktiert. τ : 250 μsec ; μ : 70 cm^2/Vsec . Kurve 1: Nach Vakuum-Behandlung (bei $p \leq 2 \times 10^{-6}$ Torr langsam auf 500° K hochgeheizt). Kurve 2: Nach Wasserstoff-Einwirkung (bei Zimmertemperatur). Kurve 3—8: Nach jeweils einstündiger Temperung bei 500° K im strömenden Wasserstoff

Fig. 2. „Photoleitfähigkeit“ $I/\Delta U$ (gemessen bei Zimmertemperatur) in Abhängigkeit von der Wellenlänge des eingestrahnten Lichtes für verschieden vorbehandelte CdS-Einkristalle in Spaltanordnung. Kristall aus Charge 246 ohne Beglimmung, mit Silber kontaktiert. τ : 750 μsec ; μ : 110 cm^2/Vsec . Kurve 1: Nach dreistündiger Temperung bei 500° K im Vakuum ($p \leq 2 \times 10^{-6}$ Torr). Kurve 2: Nach Wasserstoff-Einwirkung (bei Zimmertemperatur). Kurve 3: Nach einstündiger Temperung bei 500° K im strömenden Wasserstoff

Fig. 3. „Photoleitfähigkeit“ $I/\Delta U$ (gemessen bei Zimmertemperatur) in Abhängigkeit von der Wellenlänge des eingestrahnten Lichtes für verschieden vorbehandelte CdS-Einkristalle in Spaltanordnung. Kristall aus Charge 246 nach Beglimmung, mit Gold kontaktiert. τ : 700 μsec ; μ : 50 cm^2/Vsec . Kurve 1: Im Vakuum ($p \leq 2 \times 10^{-6}$ Torr). Kurve 2: Nach zweistündiger Temperung im Wasserstoff. Kurve 3: Nach Wasserstoff-Einwirkung (bei Zimmertemperatur). Kurve 4: Nach einstündiger Temperung im Wasserstoff. Kurve 5: Nach zweistündiger Temperung im Vakuum

Fig. 4. „Photoleitfähigkeit“ $I/\Delta U$ (gemessen bei Zimmertemperatur) in Abhängigkeit von der Wellenlänge des eingestrahnten Lichtes für verschieden vorbehandelte CdS-Einkristalle in Spaltanordnung. Kristall aus Charge 268 nach Beglimmung, mit Gold kontaktiert. τ : 450 μsec ; μ : 15 cm^2/Vsec . Kurve 1: Nach Temperung im Vakuum bei 500° K. Kurve 2: Im Wasserstoff bei Zimmertemperatur. Kurve 3: Im Vakuum ($p \leq 2 \times 10^{-6}$ Torr). Kurve 4: Im Wasserstoff bei Zimmertemperatur. Kurve 5: Nach Hochheizen im Vakuum auf 500° K.

Die nach der Wechsellichtmethode berechneten Werte für die Beweglichkeit μ liegen zwischen 15 bis 100 cm²/Vsec und damit innerhalb jenes Wertbereiches von 5 bis 200 cm²/Vsec, der in der Literatur^{4, 5, 13-21, 31} angegeben wird. Obgleich unsere Werte nicht sehr genau sind, so stellen sie doch eine brauchbare Näherung für die Bestimmung der Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit dar.

Für die Auswertung wurde lediglich der Absorptionskoeffizient K der Literatur entnommen²⁰.

4. Auswertung und Diskussion

Die Berechtigung, für die Analyse der spektralen Photoleitfähigkeit die spezialisierte Trägerbilanz von DE VORE^{22, 23} auf das vorliegende Problem anzuwenden, ist bereits diskutiert worden¹⁰. Dieser Ansatz enthält die optische Erzeugungsrate in Abhängigkeit vom Absorptionskoeffizienten, einen monomolekularen Rekombinationsterm²⁴, einen Diffusionsstrom wegen der bezüglich der Kristalldicke inhomogenen Ladungsträgererzeugung und die Oberflächenrekombination als Randbedingung.

Die Zahl der Ladungsträger N ist danach:

$$N = Q \tau \frac{1 - e^{-Z}}{1 + \xi \coth \lambda/2} \left\{ 1 + \frac{\xi \lambda \left(\lambda \coth \frac{\lambda}{2} - Z \coth \frac{Z}{2} \right)}{\lambda^2 - Z^2} \right\} \quad (1)$$

mit

$$\lambda = \frac{L}{\sqrt{D\tau}}, \quad Z = KL, \quad \xi = s \sqrt{\frac{\tau}{D}},$$

* Der relative Fehler von μ , der durch die Abweichung von K um δK bedingt ist, beträgt

$$\frac{1}{\mu} \frac{\delta \mu}{\delta K} \delta K = \frac{KL - 1}{K} \delta K$$

wenn L = Kristalldicke. Der relative Fehler ist $< \frac{2}{100} \delta K$, d.h. man kann μ benutzen, um die Größenordnungen der Diffusionskonstanten D aus der Einsteinischen Beziehung $D = \mu kT/e$ zu ermitteln.

** Da bei den untersuchten Kristallen die Löcher-Lebensdauern $< 10^{-7}$ sec^{24, 25} und jene der Elektronen 10^{-3} bis 10^{-4} sec betragen, wird die Rekombination überwiegend über Zentren erfolgen.

²⁰ BUTTLER, W.M.: Über den Einfluß des elektrischen Kontaktes bei Untersuchungen an CdS-Einkristallen. Diss. Humboldt-Universität Berlin 1954.

²¹ GILDART, L., and A.W. EWALD: Phys. Rev. **83**, 359 (1951).

²² VORE, H.B. DE: Phys. Rev. **102**, 85 (1956).

²³ TANG TING-YUAN u. KAO KUO-YU: Effekt der Oberflächenrekombinationsgeschwindigkeit auf die spektrale Empfindlichkeit der Photoleitung. Festkörperphysik und Physik der Leuchtstoffe, Tagung in Erfurt 1957, Akademie-Verlag, Berlin 1958.

²⁴ AUTH, J.: Untersuchungen über den PME-Effekt und die Eigenschaften der Defektelektronen in CdS, Diss. Humboldt-Universität Berlin 1959.

²⁵ FRIEDRICH, H.: Persönliche Mitteilung.

wenn Q Intensität der optischen Anregung,
 s Oberflächen-Rekombinations-Geschwindigkeit,
 τ Lebensdauer,
 K Absorptionskoeffizient,
 D Diffusionskoeffizient,
 L Kristalldicke.

Für mittlere Werte des Absorptionskoeffizienten K folgt durch Differentiation von Gl. (1) nach Z die Bedingungsgleichung für die Existenz eines Maximums der spektralen Verteilung der Photoleitfähigkeit.

Mit den an unseren CdS-Kristallen gemessenen Werten von:

$$\begin{aligned} L &= 10^{-2}, \\ K &= 300 \text{ cm}^{-1} \text{ an der Kante}^{20} \\ \tau &= 150 \text{ bis } 750 \text{ } \mu\text{sec}, \\ D &= 0,4 \text{ bis } 4 \text{ cm}^2/\text{sec}. \end{aligned}$$

und für das Verhältnis von

$$\frac{I_{\text{photo}}(420 \text{ m}\mu)}{I_{\text{photo}}(510 \text{ m}\mu)} = 0,5 \dots 0,005$$

ergeben sich für $\lambda = L/\sqrt{D\tau}$ Werte zwischen 0,6 bis 1 und für $Z = K \cdot L \sim 3$.
 $\xi = s\sqrt{\tau/D}$ variiert von 10 bis 10^3 .

Aus dem gemessenen Verhältnis der Photoströme, bei 510 m μ und 460 m μ für einen in Wasserstoff mehrfach getemperten CdS-Einkristall folgt, daß Wasserstoffbehandlungen eine erhöhte Oberflächen-Rekombinations-Geschwindigkeit s bedingen. Diese Oberflächen-Rekombinations-Geschwindigkeit s liegt nach der Wasserstofftemperung bei 10^2 bis 10^3 cm/sec und wächst durch mehrfach wiederholte Wasserstofftemperungen auf Werte von 10^4 bis 10^5 cm/sec.

Die bei wiederholten Temperungen ansteigenden Absolutwerte der Photoleitfähigkeit lassen sich indessen nicht durch erhöhte Oberflächen-Rekombination erklären, man hat vielmehr auch eine Änderung der Volumenlebensdauer in Betracht zu ziehen, die durch neu gebildete Rekombinationszentren²⁶ verursacht wird. Eine Erhöhung von τ bewirkt eine höhere Leitfähigkeit, da $dN/d\tau$ positiv ist. Für die untersuchten Kristalle unterscheidet sich τ vor und nach den Wasserstofftemperungen um etwa den Faktor 1,5, der allerdings (vor allem in der Nähe der Absorptionskante) noch nicht ausreicht, um den gesamten Betrag der Photoleitfähigkeits-Erhöhung zu erklären.

Die erhöhte Photoleitfähigkeit kann indessen auch dadurch auftreten, daß Ladungsträger aus neu erzeugten Zentren angeregt werden. Wahrscheinlich bilden sich sowohl bei Temperungen im Vakuum als auch

²⁶ ROSE, A.: Phys. Rev. **97**, 322 (1955).

in der reduzierenden Wasserstoff-Atmosphäre^{4,5,27-31} Schwefellücken. Für die Ladungsträgerkinetik ist es dabei gleichgültig, ob Schwefelwasserstoff gebildet und im Gasstrom abgeführt wird, oder ob Wasserstoff an Schwefelatome gebunden im Gitter verbleibt.

Jedenfalls treten durch die Temperungen Störstellen auf, die als Rekombinationszentren die Volumenlebensdauer der Leitungselektronen beeinflussen und bei optischer Anregung die Ladungsträgerzahl unmittelbar erhöhen.

²⁷ MOLLWO, E., u. F. STÖCKMANN: Ann. Phys. **3**, 223 (1948).

²⁸ FASSBENDER, J.: Z. Physik **145**, 301 (1956).

²⁹ HEILAND, G.: Z. Physik **148**, 15 (1957).

³⁰ COLLINS, R. J., u. D. G. THOMAS: Phys. Rev. **112**, 388 (1958).

³¹ MIYAZAWA, H., H. MAEDA and H. TOMISHIMA: J. Phys. Soc. Japan **14**, 41 (1959).

From the Los Alamos Scientific Laboratory, University of California
Los Alamos, New Mexico

Radioactivity in Cervidae Antlers*

By

H. FOREMAN, M. B. ROBERTS and E. H. LILLY

With 1 Figure in the Text

(Received July 10, 1961)

The experience gained in this study indicated that Cervidae antlers afford a convenient means for measuring levels of ambient radioactivity over large areas. By the use of antlers, it was possible to compare Sr^{90} levels resulting from bomb testing "fallout" year by year from 1943 through 1958 in a number of areas in the United States, Canada, and Alaska. The most surprising finding was the very high levels for Alaska in 1958.

From calculations based on total beta counts in antlers, it was possible to show that the radiation dose delivered to bone from short-lived fission products is insignificant as compared to the dose delivered by $\text{Sr}^{90}/\text{Y}^{90}$.

Introduction

Although the intense concern about "fallout" which existed a couple of years ago has largely subsided, there still remains considerable interest and need for information on levels of ambient radioactivity. The following report is an evaluation of the use of Cervidae antlers as a means for collecting such data (i.e., for sampling and estimating levels of radioactivity spread sparsely over large areas).

The idea of deer antlers as indicators of environmental radioactivity has occurred to a number of individuals over the years**, undoubtedly because of certain characteristics of this species. In its browsing, the deer takes in foliage and brush representative of a tremendous surface area for fallout deposition and metabolically concentrates the radio-

* Work performed under the auspices of the U. S. Atomic Energy Commission.

** Only one published report has appeared on radioactivity in deer antlers¹, but information, opinions, and indications of interest in the subject have come in the form of personal communications (i.e., from E. C. ANDERSON of this Laboratory, A. SCHULERT of the Lamont Geological Observatory, A. KRAMISH of the Rand Corporation, J. LADE of the New York State Department of Health, and V. SCHULTZ of the AEC's Division of Biology and Medicine). Dr. SCHULTZ has three preliminary reports on studies of radioactivity in deer antlers: one of his own, one by LINDBERG et al. from UCLA on Nevada deer, and one from Y. HIYMA of the University of Tokyo.

¹ HAWTHERN, J., and R. B. DUCKWORTH: Nature, Lond. **182**, 1294 (1958).

activity in a compact structure which is relatively easy to obtain. Moreover, isotopes of special interest—the bone seekers—are involved. The time of activity accumulation can be readily determined, and the year-by-year accumulations can be compared in the same herd. The present project was undertaken more as a feasibility study in an attempt to ascertain the limitations and usefulness of deer antler radioactivity studies rather than to answer any specific question on environmental or biospheric contamination.

Experimental Procedure

Specimen Sources. Specimens were sent to the Laboratory as a result of publicity in local news bulletins and articles in *Time* and *Sports Illustrated* magazines. No attempt was made to obtain specimens from any one particular geographic area or according to any special pattern. All antlers received, whose identity with respect to year and site of procurement was well established, were analyzed. By and large, specimens were obtained from animals killed during hunting season. A few specimens were taken from animals killed for other reasons, and these were received in the velvet stage rather than as mature antlers. No dropped antlers were used. A total of 72 specimens were obtained from the United States, Canada, and Alaska. These included not only deer antlers but also those from elk, caribou, and reindeer. At least one specimen for each year from 1945 through 1958 inclusive was obtained, and in addition one from the year 1935.

Methods of Assay. Two types of measurements were made: Sr^{90} assays and total beta counts. Strontium⁹⁰ assays were done by a procedure developed in this Laboratory². The samples were prepared for assay merely by cutting the antlers into small pieces and ashing 100 g samples in a muffle furnace for 4 hr at 700°. Replicates were done to the extent of the quantity of specimen available. Counting times were such that at levels of 10 d/min/g ash or higher the standard deviation due to counting procedure was less than 2%. At less than 10 d/min/g ash, the standard deviation was less than 5%. The standard deviation between replicate analyses is discussed in the procedural report². It was of the order of 10%.

For total beta counting, ash was used without further treatment and since color in the ash sample affected the counter efficiency, care was taken to obtain as white a sample as possible. In the preparation of the ash, the antlers were first washed with cold running water to remove

² FOREMAN, H., and M.B. ROBERTS: Submitted to Intern. J. Appl. Radiation and Isotopes.

as much blood pigment from the bone marrow as possible, and then thoroughly washed with hot soap and water to remove surface dirt and contamination. The samples were autoclaved for 2 to 3 hr and again washed with water and detergent and rinsed thoroughly with hot water. Rinsing resulted in the removal of the rest of extraneous debris, liberated marrow fat, and gelatin, and most if not all of the soluble mineral phase including sodium, potassium, and cesium. The sample was then ashed for 8 to 10 hr at 700°. After cooling, a fine powder was obtained by grinding in a mortar. Each counting sample consisted of 10 g of ash and enough scintillation solution to bring the volume to 30 cc. The scintillation solution was the standard terphenyl-POPOP-toluene mixture containing in addition 25% by weight of powdered polystyrene plastic. The plastic dissolved to give a clear viscous solution, which kept the bone powder in suspension. The counting setup has been described in a previous publication³. Each sample was counted for a total of 10000 counts to give a standard deviation for counting of less than 5%. When sufficient sample was available, three separate counting samples were prepared and counted. An internal standard of Y⁹¹ was used at the counting of each sample to determine counting efficiency. Yttrium⁹¹ was selected because it could be conveniently prepared as a standard and because it has an "average" beta spectrum.

Results

The analytical results are presented in Table 1. Strontium⁹⁰ data are expressed as d/min/g of ash rather than the customary $\mu\text{c/g}$ of calcium because calcium analyses were not done. However, a good average value for calcium in deer antler ash is generally considered to be 38.5%^{4,5} and by using this number the results in column 2 (Table 1) can be converted to $\mu\text{c/g}$ calcium merely by multiplying by the factor 1.18. Strontium⁹⁰ assays are missing on a number of specimens because not enough sample was available. Column 3 in the table shows total beta count in c/min/g. This is the crude net count after background has been subtracted. In the next column, the results for beta counting are given after correction for counting efficiency has been made. In the last column are presented results of calculations illustrating the relative importance of Sr⁹⁰ versus short-lived fission products with respect to radiation dose delivered to bone. The assumptions involved and the method of calculation are presented in the Discussion section below.

³ HAYES, F. N., B. S. ROGERS and W. H. LANGHAM: *Nucleonics* **14** (3), 48 (1956).

⁴ SCHULTZ, V.: Unpublished results on deer bones.

⁵ LINDBERG, R. G., and J. H. OLAFSON: Unpublished results on deer bones.

Table 1. *Radioactivity in Cervidae Antlers*

Area and Year of Sample	Sr ⁹⁰	Total Beta Counts	Corrected Beta Counts	Relative Dose Contribution of Sr ⁹⁰ /Y ⁹⁰
	(d/min/g ash)*	(c/min/g ash)	(d/min/g ash)	(%)
1958				
Alaska (R) . . .	105.1	35.5	206.0	100
Alaska (R) . . .	162.7	25.0	237.1	100
Alaska (C) . . .	145.5	51.5	218.4	100
Alaska (C) . . .	64.0	33.6	127.8	100
Arizona (D) . . .	9.5	4.5	27.0	87.7
Br. Columbia (D)	—	17.9	67.9	—
Br. Columbia (D)	—	11.9	74.3	—
California (D) . .	10.2	2.5	19.7	100
California (D) . .	10.1	6.5	25.2	92.5
California (D) . .	—	8.8	26.5	—
Colorado (E) . .	30.5	9.1	68.7	96.1
Michigan (D) . .	—	4.3	40.6	—
Missouri (E) . . .	21.4	8.4	79.8	77.5
Missouri (E) . . .	21.1	7.0	73.3	80.3
Missouri (E) . . .	28.8	7.6	62.9	97.1
Nevada (D) . . .	18.9	5.9	61.8	82.7
New Hamp. (D) .	15.6	11.1	39.4	92.4
New Mex. (D) . .	20.3	10.7	62.9	84.9
New Mex. (D) . .	15.5	5.2	41.6	89.8
New Mex. (D) . .	18.6	11.2	48.3	91.2
New Mex. (D) . .	10.0	2.1	25.1	92.4
New Mex. (D) . .	—	5.7	55.0	—
New Mex. (D) . .	—	9.4	61.1	—
New Mex. (D) . .	—	5.0	30.4	—
Oregon (D) . . .	—	10.7	92.3	—
Oregon (D) . . .	—	6.5	52.6	—
Oregon (D) . . .	—	8.5	94.6	—
Pennsylvania (D)	—	5.3	44.8	—
Pennsylvania (D)	—	7.8	54.6	—
Quebec (D) . . .	35.0	7.4	89.4	91.54
Quebec (D) . . .	30.3	7.2	60.6	100
Quebec (D) . . .	35.1	18.4	72.4	100
Texas (D)	—	2.6	31.0	—
Wyoming (D) . .	22.4	10.6	54.6	93.2
1957				
Alaska (C) . . .	73.3	4.4	36.2	—
California (D) . .	7.6	2.0	32.0	—
California (D) . .	8.5	11.0	25.4	—
Colorado (E) . .	16.8	4.3	36.8	—

* Can be converted to approximate $\mu\text{c/g}$ calcium by multiplying by 1.18. Notes:
D = deer; C = caribou; R = reindeer; E = elk; M = moose.

Table 1 (continued)

Area and Year of Sample	Sr ⁹⁰	Total Beta Counts	Corrected Beta Counts	Relative Dose Contribution of Sr ⁹⁰ /Y ⁹⁰
	(d/min/g ash)*	(c/min/g ash)	(d/min/g ash)	(%)
Michigan (D) . .	—	3.9	38.1	—
New Mex. (D) . .	14.7	1.5	30.3	—
New Mex. (D) . .	5.8	4.0	30.1	—
Oregon (D) . . .	10.8	6.8	39.2	—
Pennsylvania (D)	—	4.5	35.9	—
1956				
California (D) . .	—	1.6	18.1	—
Nevada (D) . . .	12.7	16.8	74.3	—
New Mex. (E) . .	11.1	4.4	39.0	—
Oregon (D) . . .	12.4	4.0	31.5	—
Oregon (D) . . .	11.9	3.0	19.6	—
Pennsylvania (D)	—	2.1	30.2	—
Wyoming (E) . .	20.3	3.0	53.4	—
1955				
California (D) . .	7.0	6.2	59.7	—
Michigan (D) . .	9.1	13.9	37.4	—
Nevada (D) . . .	—	1.0	12.1	—
New Mex. (D) . .	8.5	2.7	19.8	—
1954				
California (D) . .	—	6.8	21.7	—
Michigan (D) . .	—	10.7	39.6	—
Pennsylvania (D)	—	3.6	53.6	—
Wyoming (D) . .	6.5	3.9	25.3	—
1953				
California (D) . .	—	6.5	24.0	—
Yukon (M) . . .	3.2	3.9	15.9	—
Yukon (C) . . .	6.9	1.3	27.8	—
1952				
California (D) . .	1.7	1.1	30.2	—
Wyoming (D) . .	0.5	10.3	9.7	—
1951				
California (D) . .	1.4	4.5	30.2	—
Michigan (D) . .	4.1	2.2	22.5	—
1950				
California (D) . .	—	3.0	14.1	—

Table 1 (continued)

Area and Year of Sample	Sr^{90}	Total Beta Counts	Corrected Beta Counts	Relative Dose Contribution of Sr^{90} , Y^{90}
	(d/min/g ash)*	(c/min/g ash)	(d/min/g ash)	(%)
1949				
California (D) . .	—	1.5	59.5	—
Oregon (D) . . .	—	4.5	38.9	—
1948				
California (D) . .	1.02	1.8	14.7	—
1947				
California (D) . .	1.22	2.9	25.8	—
1946				
California (D) . .	0.6	4.6	32.0	—
1945				
California (D) . .	0.08	10.0	47.4	—

In Fig. 1, yearly Sr^{90} averages are shown for the various areas from which antlers were obtained. The data for deer, caribou, elk, and

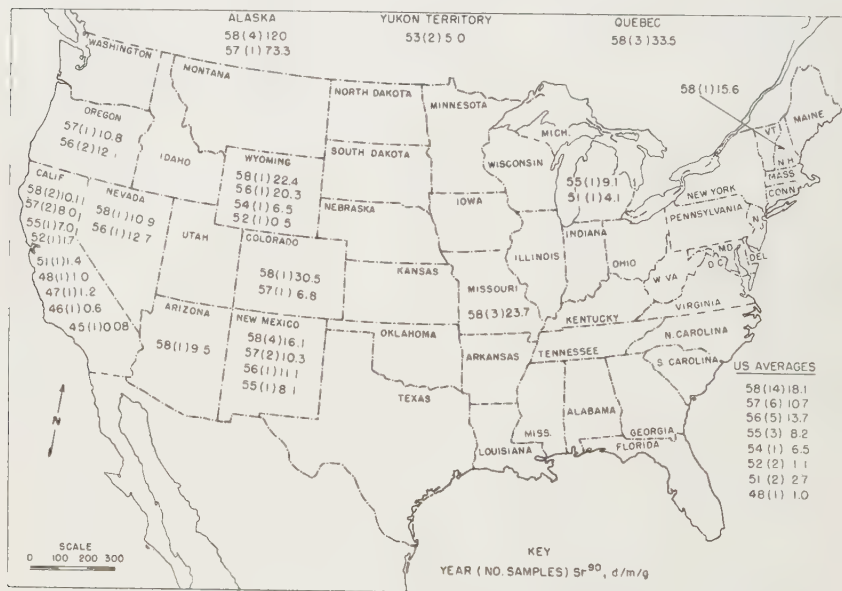


Fig. 1. Strontium⁹⁰ in Cervidae antlers (location, year, Sr^{90} content, and number of samples)

reindeer are all averaged together, since there appeared to be little difference among them. The over-all United States averages listed do

not include Alaska data, since these values are so much higher than of the others and are available for only the last two years. The inclusion of these values would unduly weight the 1957 and 1958 averages upward.

Discussion

As was anticipated, the introduction of Sr^{90} into the environment from bomb testing is readily manifested in antlers. It appears that this structure has a capacity to concentrate Sr^{90} to a greater extent than any other biological material which has been studied, except perhaps sheep bone. The very high concentration of Sr^{90} with respect to calcium most likely is due to the fact that deer, by nature of their feeding habits, consume a good deal of fallout that is not associated with calcium. It would be surprising if the metabolic discrimination factors which operate with respect to strontium and calcium in other mammals do not apply to the deer.

It is of interest that Sr^{90} in antlers increased year by year as more and more Sr^{90} was released into the environment with the exception of the 1956 to 1957 interval. Deer antlers grow in the spring and early summer, and it might be expected that the radioactivity accumulated in the antler would be the ambient fallout during that time, especially since the deer is a browsing animal and has access to fallout deposited directly on vegetation. In other words, the Sr^{90} levels are probably indicative of relatively fresh fallout rather than integrated deposition levels in the soil. The extent to which this is true depends, of course, upon the degree to which the animal draws upon its skeleton to build its antlers. This is not known at the present time. If Sr^{90} in deer antlers is indeed representative of differential fallout, then this would explain the sharp rise in 1956, followed by the dip in 1957, since there was a high rate of large-scale bomb tests in early 1956, followed by a lull in late 1956 and early 1957.

Although there were too few samples from which to draw conclusions relating Sr^{90} levels to given areas, the values for the Alaska animals are so very much higher than those from other areas that one can be quite certain, even from this limited sampling, that this is a significant difference. These very high levels are puzzling. The specimens were obtained from a region of about 65°N latitude, a general region of relatively low fallout, at least as judged by reported soil levels.

In judging the usefulness of deer antlers as indicators of radioactivity, it is of value to consider the variation from animal to animal in the same area. The data in Table 2 give an indication of this, but again the paucity of samples limits the value of these comparisons.

Although it is customary to do gross beta counts in environmental studies, these numbers are often of relatively little value due to lack

of information as to the isotopic composition of the radioactivity. This was certainly true in the present study. The raw beta counts exhibited so much uninterpretable variation that they were of value only in indicating the presence or absence of activity. When the numbers are corrected for counting efficiency, the variation was decreased and a certain amount of gross structure could be seen in the data. For instance, the 1958 Alaska values could be distinguished easily from the other numbers. In fact, the 1958 counts for all areas sampled were considerably higher than those of the previous years.

Table 2. *Strontium⁹⁰ Values in Herd-Related Animals*

Area	Year	Sr ⁹⁰	
		(d/min/g ash)	
California	1958	a)	10.2
		b)	10.1
Quebec	1958	a)	29.5; 31.1
		b)	35.1
		c)	36.5; 32.5; 36.0
Missouri	1958	a)	21.4
		b)	21.1
		c)	28.9; 28.9; 27.6; 29.1; 29.2
California	1957	a)	7.6
		b)	8.5
Oregon	1956	a)	13.6; 11.1; 12.2
		b)	11.5; 12.3

Each lower case letter represents a single animal. Horizontally arranged series of numbers are replicate analytical results.

The total beta count, together with the Sr⁹⁰ data, were used in an attempt to consider the repeatedly raised question of the relative importance of Sr⁹⁰ versus short-lived bone seekers in delivering radiation dose to the bone. In doing this, the count due to Sr⁹⁰/Y⁹⁰ was subtracted from the corrected total beta count. In many instances, as can be seen from Table 1, the Sr⁹⁰/Y⁹⁰ count accounted for all the beta activity. In these cases, the radiation dose attributable to the Sr⁹⁰/Y⁹⁰ equilibrium mixture was considered 100%. In other specimens, there was a surplus of beta counts. These were arbitrarily attributed to Sr⁸⁹. By correcting the count for decay between the time of counting and time of collection of the specimen, the number of microcuries of Sr⁸⁹ as compared to microcuries of Sr⁹⁰ present could be determined. From there it was possible to compare the dose contribution of the two isotopes, since 1 µc of Sr⁹⁰ eventually delivers 100 times the radiation dose of 1 µc of Sr⁸⁹.

It can be seen even in the antler situation, which favors relatively high deposition of short-lived emitters, the radiation dose to bone was overwhelmingly associated with Sr^{90} . If the assumption that the surplus beta activity is due to Sr^{89} is wrong, then even more of the dose must come from Sr^{90} , since the other short-lived bone-seeking fission products deliver less radiation dose than does Sr^{89} microcurie for microcurie. Thus it can be seen, even from rough calculations as these, the dose from isotopes other than Sr^{90} in bone is relatively unimportant.

It is felt that Sr^{90} measurements on antlers are worthwhile and can provide interpretable and meaningful information. Strontium⁹⁰ assays by the procedure indicated above are relatively simple and easy to do (as compared to other methods), and because of the propensity of deer for Sr^{90} , in areas where antlers are available, their collection and assay are probably one of the most sensitive, convenient, and inexpensive ways to log levels of radioactivity. The concomitant rise of Sr^{90} in antlers with Sr^{90} fallout over the years suggests that periodic assays of Sr^{90} in antlers from captive herds, such as the caribou herd in Alaska or the elk herd on the Federal Reservation in the state of Missouri, could be used to measure the rate of stratospheric fallout. With the cessation of large scale air bursts in late 1958, one could expect, on the basis of LIBBY's predictions⁶, that Sr^{90} levels in antlers would peak in 1960, and show a decline in subsequent years at a pace indicative of the Sr^{90} fallout rate. It might be fruitful to do such a study to supplement the data on fallout rate being obtained by other methods.

There are, of course, situations other than those involving fallout from bomb tests in which it is necessary and desirable to know levels of environmental contamination (i.e., the environs of reactors or in areas in and about radioactive dumps). In such areas, it could be very useful to foster deer herds so that antlers could be added to the specimens that are usually collected to monitor biospheric contamination. Antlers and probably sheep skeletons could provide the most sensitive indicators of Sr^{90} contamination that are available.

Again from the experience of this study, it appears that total beta counts are of limited value and unless a very large series of samples is to be tested merely for the presence or absence of radioactivity, they are probably not worthwhile.

⁶ LIBBY, W. F.: U. S. Atomic Energy Commission Report TID-5556, May 1956.

Aus dem Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg

Bestimmung des Kompoundkern- und Stripping-Anteils der (d, p) - und (d, n) -Reak- tionen an Zr^{94} und Zr^{96}

Von

R. BOCK

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 30. Juni 1961)

An experiment has been accomplished which gives information on the reaction mechanism of the $(\text{Zr}^{94,96} + d)$ -reactions. Total cross sections and excitation functions up to 11,8 MeV have been measured for the reactions $\text{Zr}^{94}(d, p)$, $\text{Zr}^{94}(d, n)$, $\text{Zr}^{96}(d, p)$, $\text{Zr}^{96}(d, n)$ and $\text{Zr}^{96}(d, 2n)$ by the activation method. The results are compared with cross sections calculated according to the statistical theory of nuclear reactions. It is shown that the (d, p) -reactions proceed almost completely by the stripping-mechanism. The (d, n) - and $(d, 2n)$ -excitation functions on the other hand are in good agreement with the predictions of the statistical theory and one can conclude that the compound nucleus mechanism is the dominating process.

1. Einleitung

Systematische Messungen totaler Wirkungsquerschnitte von deutroneninduzierten Kernreaktionen¹ hatten unter anderem ergeben, daß für mittelschwere Kerne mit $Z \gtrsim 35$ die $(d, 2n)$ -Wirkungsquerschnitte²⁻⁶ unmittelbar oberhalb der Schwelle steil ansteigen und überraschend große Werte annehmen. Zur Erklärung dieser Tatsache wurde angenommen, daß der Kompoundkern-Anteil der (d, n) -Reaktion im Gegensatz zu der üblichen Annahme eines dominierenden Anteils direkter Reaktionen in diesem Bereich verhältnismäßig groß sein müsse. Um diese Vermutung zu erhärten, wurde der Versuch unternommen, den Kompoundkern-Anteil der Deutronen-Reaktion in einigen Fällen durch Messung von Protonen- und Neutronen-Emissionswahrscheinlichkeiten zu bestimmen.

Diesem Versuch liegt folgende Überlegung zugrunde: Das Verhältnis von Neutronen- zu Protonenemission W_n/W_p aus einem hoch angeregten

¹ BOCK, R.: Diss. Heidelberg 1958.

² BURGUS, W. H., G. A. COWAN, J. W. HADLEY, W. HESS, T. SHULL, M. L. STEVENSON and H. F. YORK: Phys. Rev. **95**, 750 (1954).

³ BALESTRINI, S. J.: Phys. Rev. **95**, 1502 (1954).

⁴ MISKEL, J. A., and A. C. WAHL: Phys. Rev. **84**, 700 (1951).

⁵ KAFALAS, P., and J. W. IRVINE: Phys. Rev. **104**, 703 (1956).

⁶ RAMLER, W. J., J. WING, D. H. HENDERSON and J. R. HUIZENGA: Phys. Rev. **114**, 154 (1959).

Kompoundkern läßt sich im Rahmen der statistischen Theorie der Kernreaktionen⁷⁻¹⁰ berechnen. Es hängt für einen bestimmten Kern nur von dessen Anregungsenergie ab und ist in seiner Größe in dem hier in Frage kommenden Energiebereich unter anderem sehr wesentlich durch den Einfluß des Coulomb-Walls, den die emittierten Protonen durchdringen müssen, bestimmt. Für den Compoundkern-Prozeß wird die (d, p) -Reaktion also gegenüber der (d, n) -Reaktion durch die Coulomb-Kräfte behindert. Im Gegensatz hierzu wird im Fall des Stripping-Prozesses die (d, p) -Reaktion begünstigt, da wegen der Coulomb-Abstoßung die Wahrscheinlichkeit für den Einfang des Neutrons größer ist als die für das Proton. Das Emissionsverhältnis von Neutron zu Proton und dessen Energieabhängigkeit wird folglich vom Reaktionsmechanismus abhängen, und durch Vergleich der theoretischen Werte von W_n/W_p für den Compoundkern-Prozeß mit den Meßwerten sollte es deshalb möglich sein, den Stripping-Anteil abzuschätzen.

Die totalen Wirkungsquerschnitte für (d, n) - und (d, p) -Reaktionen wurden mit Hilfe der Aktivierungsmethode bestimmt. Mit dieser Methode ist die verhältnismäßig selten zu realisierende Forderung verknüpft, daß beide Reaktionen auf instabile Endkerne führen mit Eigenschaften, die absolute Aktivitätsmessungen erlauben. Das experimentelle Verfahren dieser Messungen, für die die Kerne Zr^{94} und Zr^{96} ausgewählt wurden, wird in Abschnitt 2 beschrieben. In Abschnitt 3 folgt eine Erörterung der Voraussetzungen und der Parameter für die Berechnung von totalen Wirkungsquerschnitten für Compoundkern-Reaktionen nach der statistischen Theorie. Der Gang der Rechnung wird kurz skizziert. Abschließend werden in Abschnitt 4 die experimentellen Daten auf Grund der statistischen Theorie analysiert.

2. Experimente

Totale Wirkungsquerschnitte und Anregungsfunktionen wurden nach der Aktivierungsmethode mit dem in Ref. 1 ausführlich beschriebenen Verfahren bestimmt. Folienstapel von je 18 20- μ -Folien aus reinstem Zirkonium wurden im internen Strahl des Heidelberger Zyklotrons mit Deuteronen von 11,8 MeV bestrahlt. Zur Absolutbestimmung der induzierten Aktivitäten dienten NaI(Tl)-Szintillationskristalle, deren Nachweiswahrscheinlichkeit für γ -Strahlung von 0,4 bis 2,75 MeV mit Hilfe der $\beta\gamma$ -Koinzidenzmethode geeicht worden war. Zur Berechnung der

⁷ WEISSKOPF, V. F., and D. H. EWING: Phys. Rev. **57**, 472 (1940).

⁸ BLATT, J. M., and V. F. WEISSKOPF: Theoretical Nuclear Physics. New York 1952.

⁹ MOORE, R. G.: Rev. Mod. Phys. **32**, 101 (1960).

¹⁰ ERICSON, T.: Advanc. Physics **9**, 425 (1960).

Wirkungsquerschnitte wurde folgende Formel benutzt:

$$\sigma_{\text{tot}} = 2,66 \cdot 10^{-6} \frac{A \cdot N_0}{\varrho \cdot H \cdot d \cdot q} [\text{mb}] \quad (1)$$

(A Atomgewicht, N_0 Gesamtzahl der umgewandelten Kerne, ϱ Dichte [g cm^{-3}], H Isotopenhäufigkeit, d Foliendicke [μ], q integrierter Deuteronenstrom [μAsec]).

Die Aktivitäten wurden identifiziert erstens durch einen chemischen Trennungsgang, der auf einer Extraktion von Niob mit Methylisobutyl-

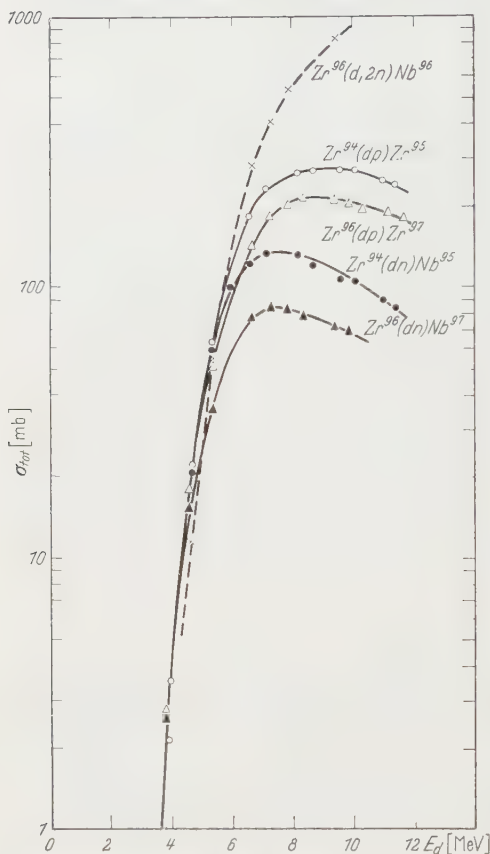


Fig. 1. Totale Wirkungsquerschnitte für (d, p) -, (d, n) - und $(d, 2n)$ -Reaktionen an Zr^{91} und Zr^{96}

meist klein und blieben unberücksichtigt. Durch den chemischen Trennungsgang bedingte Fehlerquellen, die auf unvollständiger Trennung

¹¹ FRESENIUS, W., u. G. JANDER: Handbuch der analytischen Chemie, Teil III, Bd. Vb, S. 425. 1957.

¹² Nuclear Data Sheets, C.L. MCGINNIS (editor), 1959.

beruhte¹¹, zweitens durch Bestimmung des zeitlichen Abfalls der Aktivitäten und drittens durch Analyse der γ -Spektren, für die ein Einkanaldiskriminator (Atomic, Modell 510) und ein 256-Kanal-Analysator (RCL, Modell 20611) zur Verfügung standen. Die nach Formel (1) berechneten Wirkungsquerschnitte beruhen auf Intensitätsmessungen an den in Tabelle 1, Spalte 4 angegebenen γ -Linien. Die in Spalte 5 aufgeführten Wirkungsquerschnitte sind Mittelwerte aus mindestens zwei von einander unabhängigen Messungen. Bei den angegebenen Fehlergrenzen handelt es sich um einfache statistische Fehler der Aktivitätsmessungen (einschließlich der Eichmessungen). Fehler von Messungen anderer Autoren¹², die in die Berechnung der Wirkungsquerschnitte eingehen (Meßwerte der Spalten 3 und 4 in der Tabelle), sind

der Nb- und Zr-Aktivitäten beruhten, konnten durch Messungen an den Rückständen der Trennungsgänge nahezu quantitativ erfaßt und berücksichtigt werden.

Tabelle. Gemessene Wirkungsquerschnitte und Zerfallsdaten der zur Messung benutzten Isotope

1 Reaktion	2 Q-Wert [MeV]	3 Halbwertszeit des Endkerns	4 γ-Eichlinie [keV] und deren Häufigkeit pro Zerfall	5 σ _{tot} (bei (d,p)- und (d,n)-Reaktionen im Maximum)
Zr ⁹⁴ (d, p) Zr ⁹⁵	4,20	65 d	726 55 %	265 ± 15 mb bei 9,5 MeV
Zr ⁹⁴ (d, n) Nb ⁹⁵	4,53	35 d	760 99 %	133 ± 10 mb bei 7,8 MeV
Zr ⁹⁶ (d, p) Zr ⁹⁷	1,6	17 h	750 96 %	215 ± 12 mb bei 9 MeV
Zr ⁹⁶ (d, n) Nb ⁹⁷	5,1	74 m	665 99 %	84 ± 5 mb bei 7,5 MeV
Zr ⁹⁶ (d, 2n) Nb ⁹⁶	− 2,9	23 h	1080 52 % 770 100 %	770 ± 50 mb bei 9,4 MeV

Die gemessenen totalen Wirkungsquerschnitte sind in Abhängigkeit von der Deuteronenenergie in Fig. 1 dargestellt. Die Festlegung der Energieskala beruht auf berechneten Energie-Reichweite-Beziehungen, die auf Messungen von BICHSEL et al.¹³ und Angaben von WHALING¹⁴ und STERNHEIMER¹⁵ beruhen. Als Beispiel für die Übereinstimmung der Ergebnisse verschiedener Meßreihen sei auf die Fig. 2 hingewiesen, in der das Verhältnis von (d, n)- zu (d, p)-Wirkungsquerschnitt für Zr⁹⁴ in Abhängigkeit von der Deuteronenenergie für drei verschiedene Meßreihen aufgetragen ist.

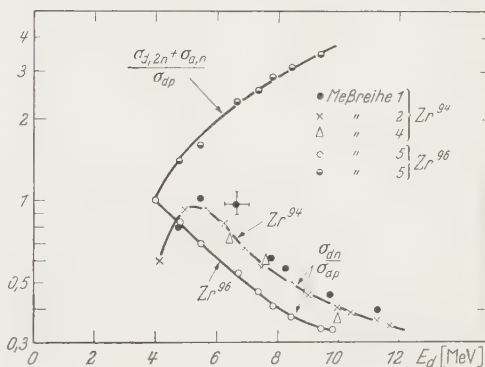


Fig. 2. Verhältnisse der Wirkungsquerschnitte $\sigma_{d,n}/\sigma_{d,p}$ und $(\sigma_{d,n} + \sigma_{d,2n})/\sigma_{d,p}$ an Zr⁹⁴ und Zr⁹⁶

3. Berechnung von Emissionswahrscheinlichkeiten nach der statistischen Theorie der Kernreaktionen

Die Frage, inwieweit sich Kernreaktionen durch die statistische Theorie beschreiben lassen, wurde während der letzten Jahre in zahlreichen Experimenten untersucht. Hierbei ergab sich im Energiebereich

¹³ BICHSEL, H., R. F. MOZLEY and W. A. ARON: Phys. Rev. **105**, 1788 (1957).

¹⁴ WHALING, W.: Handbuch der Physik, Herausgeber S. FLÜGGE, Bd. 34, S. 193. 1957.

¹⁵ STERNHEIMER, R. M.: Phys. Rev. **115**, 138 (1959).

bis etwa 20 MeV sowohl aus Anregungsfunktionen¹⁶⁻¹⁸ von Reaktionen mit Protonen und α -Teilchen als auch aus den Energiespektren und Winkelverteilungen emittierter Teilchen¹⁹⁻²⁶, vor allem bei neutronen-induzierten Reaktionen, daß diese Reaktionen sich im wesentlichen im Rahmen der statistischen Theorie interpretieren lassen, daß andererseits jedoch auch charakteristische Abweichungen von den Voraussagen der Theorie auftreten, die durch Annahme eines reinen Compoundkern-Mechanismus nicht erklärt werden können. Diese bei den einzelnen Experimenten sehr unterschiedlichen Diskrepanzen bestehen vor allem in (1) einer Asymmetrie der Winkelverteilung um 90° , (2) einem zu hohen Anteil an Reaktionsprodukten hoher Energie (besonders in Vorwärtsrichtung) sowie (3) einem gelegentlich bei der Emission geladener Teilchen beobachteten zu großen Anteil energiearmer Teilchen.

Die Diskrepanzen (1) und (2) lassen sich als Beitrag direkter Reaktionen interpretieren, der dem Compoundkern-Prozeß superponiert ist²⁷. Die Gültigkeit der statistischen Theorie wird dabei nicht in Frage gestellt. Quantitative Abschätzungen dieses Anteils haben ergeben, daß — auf den totalen Wirkungsquerschnitt bezogen — der Beitrag im genannten Energiebereich meist gering ist, daß also der Compoundkern-

¹⁶ BLASER, J.P., F. BOEHM, P. MARMIER u. D.C. PEASLEE: *Helv. phys. Acta* **24**, 3 (1951). — BLASER, J.P., F. BOEHM, P. MARMIER u. P. SCHERRER: *Helv. phys. Acta* **24**, 441 (1951). — MEADOWS, J.W.: *Phys. Rev.* **91**, 885 (1953). — GHOSHAL, S.N.: *Phys. Rev.* **80**, 939 (1950). — BELL, R.E., and H.M. SKARSGARD: *Canad. J. Phys.* **34**, 745 (1956). — COHEN, B.L., and E. NEWMAN: *Phys. Rev.* **99**, 718 (1955). — ALBERT, R.D., J.D. ANDERSON and C. WONG: *Phys. Rev.* **120**, 2149 (1960). — BLEULER, E., A.K. STEBBINS and D.J. TENDAM: *Phys. Rev.* **90**, 460 (1953). — PORGES, K.G.: *Phys. Rev.* **101**, 225 (1956).

¹⁷ PORILE, N.T.: *Phys. Rev.* **115**, 939 (1959). — PORILE, N.T., and D.L. MORRISON: *Phys. Rev.* **116**, 1193 (1959).

¹⁸ AMIEL, S.: *Phys. Rev.* **116**, 415 (1959).

¹⁹ GRAVES, E.R., and L. ROSEN: *Phys. Rev.* **89**, 343 (1953). — GUGELOT, P.C.: *Phys. Rev.* **81**, 51 (1951). — ROSEN, L., and L. STEWART: *Phys. Rev.* **99**, 1052 (1955). — EISEBERG, R.M., G. IGO and H.E. WEGNER: *Phys. Rev.* **100**, 1309 (1955). — EISEBERG, R.M., and G. IGO: *Phys. Rev.* **93**, 1039 (1954). — IGO, G.: *Phys. Rev.* **106**, 256 (1957).

²⁰ FULMER, C.B., and C.D. GOODMAN: *Phys. Rev.* **117**, 1339 (1960). — FULMER, C.B., and B.L. COHEN: *Phys. Rev.* **112**, 1672 (1958).

²¹ COHEN, B.L., and A.G. RUBIN: *Phys. Rev.* **113**, 579 (1959).

²² BRAMBLETT, R.L., and T.W. BONNER: *Nuclear Phys.* **20**, 395 (1960).

²³ ALLAN, D.L.: *Nuclear Phys.* **6**, 464 (1958); **10**, 418 (1959). — ALLAN, D.L.: *Proc. Phys. Soc. A* **70**, 195 (1957). — ALLAN, D.L.: *Proc. of the Int. Conf. on Nucl. Structure*, Kingston, Canada 1960, Paper No. 4.

²⁴ COLLI, L., U. FACCHINI, I. IORI, M.G. MARCAZZAN and A.M. SONA: *Nuovo Cim.* **13**, 730 (1959).

²⁵ MARCH, P.V., and W.T. MORTON: *Phil. Mag.* **3**, 143, 557 (1958).

²⁶ KUMBE, I., and R.W. FINK: *Nuclear Phys.* **15**, 316 (1960).

²⁷ ERICSON, T.: *Proc. of the Int. Conf. on Nucl. Structure* Kingston, Canada 1960, S. 697.

Mechanismus für Reaktionen mit Protonen, Neutronen und α -Teilchen dominiert. Nach verschiedenen Autoren^{23, 25, 26} beträgt z.B. der Wirkungsquerschnitt für direkte (n, p)-Reaktionen bei 14 MeV etwa 5 bis 20% des gesamten Wirkungsquerschnitts. In einigen Fällen sind jedoch auch höhere Beiträge direkter Prozesse beobachtet worden. Auf die zu große Intensität energiearmer geladener Teilchen (Punkt 3) wird weiter unten noch eingegangen.

Für Deuteronen-Reaktionen wurden solche Analysen bisher nur ganz vereinzelt unternommen, da wegen des erwarteten hohen Anteils an direkten Reaktionen (vor allem Stripping)^{28, 29} die Voraussetzungen zur Prüfung der Theorie nicht gegeben zu sein schienen. Für die Interpretation von Anregungsfunktionen wurde die statistische Theorie nur in einigen Fällen herangezogen³⁻⁵. Wegen der erwähnten Schwierigkeit, mit der Aktivierungsmethode alle an einem Kern auftretenden Reaktionen quantitativ zu erfassen, wurden solche Messungen bisher nur an Bi^{209} ausgeführt⁶ und mit einer von JACKSON³⁰ angegebenen modifizierten statistischen Theorie verglichen. Da die vorliegenden Untersuchungen¹ darauf hinwiesen, daß auch im Bereich mittelschwerer Kerne der Compoundkern-Anteil in gewissen Fällen offenbar dominiert, erschien es lohnend, den Versuch zu unternehmen, diese Messungen mit Hilfe der statistischen Theorie zu interpretieren. Im folgenden soll daher zunächst die Theorie, soweit sie für die Analyse der Messungen von Bedeutung ist, und die Annahmen über die Parameter in groben Zügen diskutiert werden.

Nach der statistischen Theorie⁸ ist die Wahrscheinlichkeit für die Emission eines Teilchens mit der Energie ε in ein Energieintervall $d\varepsilon$ aus einem hoch angeregten Compoundkern gegeben durch

$$N(\varepsilon) d\varepsilon = \text{const} \cdot \sigma_i \varepsilon \omega (E - \varepsilon) d\varepsilon \quad (2)$$

(σ_i inverser Wirkungsquerschnitt, d.h. Einfangquerschnitt für das emittierte Teilchen mit der kinetischen Energie ε in den Endkern; $\omega(E - \varepsilon)$ Niveaudichte des Endkerns; E Maximalenergie des emittierten Teilchens).

Die Gesamtwahrscheinlichkeit für die Emission bestimmter Teilchen, etwa Protonen oder Neutronen, erhält man durch Integration über das Spektrum (2)

$$W_{n,p} = \int_0^{E_{n,p}} N_{n,p}(\varepsilon) d\varepsilon. \quad (3)$$

²⁸ DOSTROVSKY, I., Z. FRAENKEL and G. FRIEDLANDER: Phys. Rev. **116**, 683 (1959). — DOSTROVSKY, I., Z. FRAENKEL and L. WINSBERG: Phys. Rev. **118**, 781 (1960).

²⁹ BROMLEY, D. A.: Proc. of the Int. Conf. on Nucl. Structure Kingston, Canada 1960, S. 272.

³⁰ JACKSON, J. D.: Canad. J. Phys. **34**, 767 (1956).

Da die Größen ω und σ_i und ihre Energieabhängigkeit im allgemeinen nicht aus Messungen bekannt sind, ist man auf theoretische Werte angewiesen, die auf Grund bestimmter Modellvorstellungen berechnet werden können.

Niveaudichte ω . Üblicherweise wird ein Fermigas-Modell zugrunde gelegt, das folgende Abhängigkeit der Niveaudichte von der Anregungsenergie ($E - \varepsilon$) liefert:

$$\omega(E - \varepsilon) = C \exp \{2[a(E - \varepsilon)]^{\frac{1}{2}}\}. \quad (4)$$

Nach der einfachen Modellvorstellung sind C und a energieunabhängige Größen, die sich kontinuierlich mit der Massenzahl ändern. Infolge der Paarungsenergie der Nukleonen hängt jedoch die Niveaudichte noch sehr stark von der Geradzahligkeit der Protonen und Neutronen im Kern ab. Für diese Abhängigkeit haben WEISSKOPF und EWING⁷ und HURWITZ und BETHE³¹ prinzipiell verschiedene Korrektionsmöglichkeiten angegeben. Nach den letzteren wird die Anregungsenergie ($E - \varepsilon$) bei gg-, ug- und gu-Kernen erst von einer Energie δ ab gerechnet (charakteristisches Niveau), wobei man annimmt, daß lediglich die Grundzustände infolge der Paarungsenergie eine Depression δ erfahren und daher im Vergleich zu den übrigen Niveaus zu tief liegen. Da in den vorliegenden Fällen die Endkerne immer gu- oder ug-Kerne sind, kann die Paarungsenergie und damit die Korrektur auf ein charakteristisches Niveau in erster Näherung unberücksichtigt bleiben. Es sollen hier auch nicht die zahlreichen Modifikationen der Niveaudichteformel diskutiert werden, bei denen C als energieabhängige Größe angesehen wird^{10, 32, 33, 34} und Paarungsenergien³³ und Schaleneffekte^{34, 35} berücksichtigt werden. Um den Einfluß von Schaleneffekten zu testen, wurde jedoch in einigen Fällen die Niveaudichte nach einer von NEWTON³⁴ angegebenen, modifizierten Formel berechnet, in der a auch von der Schalenmodellkonfiguration abhängt. Das Ergebnis wird im nächsten Abschnitt diskutiert.

Die hier benutzte Niveaudichteformel (4) hat im Hinblick auf den mathematischen Aufwand den Vorzug, daß bei geeigneter Wahl von σ_i der Ausdruck (3) geschlossen integrierbar ist, was bei den modifizierten Formeln nicht mehr der Fall ist.

Für die Konstante a , die die Zunahme der Niveaudichte mit der Anregungsenergie charakterisiert und deshalb die Form des Spektrums der

³¹ HURWITZ, H., and H. A. BETHE: Phys. Rev. **81**, 898 (1951).

³² LANG, J. M. B., and K. J. LECOUEUR: Proc. Phys. Soc. Lond. A **67**, 586 (1954).

³³ CAMERON, A. G. W.: Canad. J. Phys. **36**, 1040 (1958).

³⁴ NEWTON, T. D.: Canad. J. Phys. **34**, 804 (1956).

³⁵ CAMERON, A. G. W.: Canad. J. Phys. **35**, 666 (1957).

emittierten Teilchen stark beeinflußt, liegen zahlreiche Erfahrungswerte vor, die aber je nach der Art des Experimentes, durch das sie bestimmt wurden, stark differieren³⁶. Während bei (p, n) -Reaktionen und inelastischen Streuexperimenten die nach dem Fermigas-Modell postulierte Proportionalität zwischen a und der Massenzahl A beobachtet wurde, ergeben Messungen von Anregungsfunktionen den A -unabhängigen Wert $a \approx 2,5$. DOSTROVSKY et al.²⁸ erhielten bei einer umfangreichen Analyse von Kernverdampfungsprozessen beste Übereinstimmung mit den Experimenten für $a = A/20$ (für die Endkerne $\text{Nb}^{95,97}$ und $\text{Zr}^{95,97}$ also $a \approx 5$). Wegen dieser Diskrepanz wurden die Emissionswahrscheinlichkeiten (3) jeweils für mehrere a -Werte berechnet. Um eine Vorstellung über die Zuverlässigkeit solcher Rechnungen zu geben, sei erwähnt, daß die von NEWTON³⁴ berechneten Niveaudichten mit den beobachteten bis auf etwa einen Faktor 3 übereinstimmen.

Inverser Wirkungsquerschnitt σ_i . Die Verschiedenheit zwischen Neutronen- und Protonenspektrum ist vor allem durch σ_i , das die Coulomb-Durchdringungskoeffizienten enthält, bedingt. Einfangquerschnitte für Neutronen in Abhängigkeit von der Energie sind bei BLATT und WEISSKOPF⁸ angegeben und lassen sich im Bereich mittelschwerer Kerne ($A \approx 100$) sehr gut durch die empirische Beziehung

$$\sigma_i = \sigma_g \alpha (1 + \beta/\varepsilon) \quad (5)$$

wiedergeben²⁸. (σ_g geometrischer Kernquerschnitt, α und β Konstanten.) Geht man mit (5) in (3) ein, so bleibt (3) geschlossen integrierbar. Einfangquerschnitte für Protonen wurden von BLATT und WEISSKOPF⁸ und von SHAPIRO³⁷ für die beiden Radiusparameter $r_0 = 1,3$ f und $1,5$ f berechnet. Hier wurden die Werte von SHAPIRO benutzt, und zwar für $r_0 = 1,5$ f, da mit diesem Wert bessere Übereinstimmung mit experimentellen Kernreaktionsdaten erzielt wurde^{6, 21, 28, 38}. Auch hier wurde aus Gründen der geschlossenen Integrierbarkeit die Energieabhängigkeit von σ_i durch einen Term von der Form $(1 - KB/\varepsilon)$ approximiert^{17, 39}, in dem B die Höhe des Coulomb-Walls bedeutet. Die Konstante K ergibt sich dabei für die Werte von SHAPIRO³⁷ zu 0,6.

Abschließend sei noch auf einen Effekt hingewiesen, der unter Umständen die Zuverlässigkeit der Rechnungen beeinträchtigt. Die σ_i -Werte wurden berechnet für den Einfang von Protonen in den im Grundzustand befindlichen Endkern, während tatsächlich in nahezu allen Fällen der Endkern in einem angeregten Zustand zurückbleibt. Dieser Unterschied ist hier insofern von Bedeutung, als Anzeichen für eine

³⁶ IGO, G., and H.E. WEGNER: Phys. Rev. **102**, 1364 (1956).

³⁷ SHAPIRO, M.M.: Phys. Rev. **90**, 171 (1953).

³⁸ EVANS, J.A.: Proc. Phys. Soc. Lond. A **73**, 33 (1959).

³⁹ LECOUEUR, K.J.: Proc. Phys. Soc. Lond. A **63**, 259 (1950).

Reduktion des Coulomb-Walles bei angeregten Kernen bestehen^{20, 40}, die zu einer erhöhten Emissionswahrscheinlichkeit für Protonen führen würde. Auch die schon erwähnte zu große Intensität energiearmer Protonen (Punkt 3) ist in diesem Sinne zu interpretieren. Die Auswirkung auf die hier untersuchten Fälle wird im nächsten Abschnitt diskutiert.

4. Ergebnisse und Diskussion

Die Berechnung des Quotienten W_n/W_p führte zu Ergebnissen, die trotz der Unsicherheiten der im vorhergehenden Abschnitt diskutierten Parameter zuverlässige Folgerungen hinsichtlich des Reaktionsmecha-

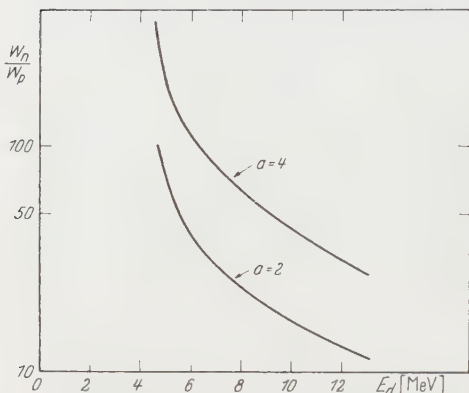


Fig. 3. W_n/W_p in Abhängigkeit von der Deuteronenenergie

nismus erlauben. Es zeigte sich nämlich, daß für alle in Frage kommenden a -Werte die Neutronenemission gegenüber der Protonenemission außerordentlich begünstigt ist. In Fig. 3 sind berechnete Werte von W_n/W_p für Nb^{96} in Abhängigkeit von der Deuteronenenergie für die a -Werte 2 und 4 MeV^{-1} aufgetragen. Nach dem für Nb^{96} wahrscheinlichsten Wert von $a \approx 5$ dominiert die Neutronenemission im gesamten Energiebereich so stark, daß (d, p) -Prozesse durch Compound-

kern-Mechanismus praktisch vernachlässigbar sind. Darüber hinaus ergibt der nach NEWTON³⁴ berechnete Einfluß der Schalenstruktur auf die Niveaudichte für Nb^{95} eine beträchtlich höhere Niveaudichte als für Zr^{95} und bewirkt damit noch eine weitere Erhöhung des W_n/W_p -Wertes, der in Fig. 3 noch nicht berücksichtigt ist. Nur die am Ende des letzten Abschnittes diskutierte Reduktion des Coulomb-Walles bei angeregten Kernen könnte zu verstärkter Protonenemission führen, doch könnte eine Änderung um etwa einen Faktor 4 ohne Auswirkung auf die weiteren Folgerungen toleriert werden. Für Nb^{98} liegen die Werte wegen der größeren Q -Wert-Differenz zwischen (d, n) - und (d, p) -Reaktion noch mehr zugunsten der (d, n) -Reaktion. Es kann daher der beobachteten (d, p) -Reaktion (vgl. Fig. 1) in beiden Fällen nur direkte Wechselwirkung zugrunde liegen.

⁴⁰ KIKUCHI, K.: Progr. Theoret. Phys. Jap. **17**, 643 (1957). — NÉMETH, J.: Nuclear Phys. **6**, 686 (1958); **16**, 331 (1960). — WEISSKOPF, V.F.: Proc. of the Int. Conf. on Nucl. Structure Kingston, Canada 1960, S. 709.

Im Widerspruch hierzu ergibt sich nach BROMLEY²⁹ aus Messungen im Bereich $25 \lesssim Z \lesssim 60$ für den Compoundkern-Anteil der (d, p) -Reaktion ein Betrag von etwa 15 %. Wegen der starken Abhängigkeit des Quotienten W_n/W_p von den Q -Werten der (d, n) und (d, p) -Reaktion ist der (d, p) -Compoundkern-Anteil beträchtlichen Schwankungen unterworfen, während die direkte Reaktion durch die Q -Werte weniger beeinflusst wird. Die Angabe von BROMLEY kann deshalb nur den Charakter eines Mittelwertes haben. Der außerordentlich kleine Compoundkern-Anteil der Zr^{94} (d, p) - und Zr^{96} (d, p) -Reaktion ist durch die extreme Lage dieser beiden Isotope auf der neutronenreichen Seite des Energietals im Massendiagramm der Kerne bedingt.

Zur Untersuchung des Reaktionsmechanismus der (d, n) -Reaktion ist es möglich, folgendes Verfahren anzuwenden: An Zr^{96} kann man neben der (d, p) - und (d, n) -Reaktion auch die $(d, 2n)$ -Reaktion, deren Schwelle bei 2,9 MeV liegt, mit der Aktivierungsmethode messen. Da bekanntlich bei der Konkurrenz zwischen Neutronen- und γ -Emission die letztere zu vernachlässigen ist, gehen alle angeregten Zustände des Endkerns der (d, n) -Reaktion, Nb^{97} , unterhalb der $(d, 2n)$ -Schwelle durch γ -Emission in den Grundzustand von Nb^{97} über, während die Zustände oberhalb der Schwelle durch Neutronenemission in Nb^{96} zerfallen. Durch quantitative Messung der Aktivitäten Nb^{97} und Nb^{96} in Abhängigkeit von der Deuteronenenergie gewinnt man also Aufschluß über das primäre Neutronenspektrum; indem man die Deuteronenenergie von der $(d, 2n)$ -Schwelle ab sukzessive erhöht, kann man somit das Neutronenspektrum, sofern es ein Verdampfungsspektrum ist, abtasten.

Das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte $\sigma(d, 2n)/\{\sigma(d, 2n) + \sigma(d, n)\}$ wurde nach der statistischen Theorie wieder für verschiedene Werte des Parameters a berechnet und ist zusammen mit den aus absoluten Aktivitätsmessungen erhaltenen Meßwerten in Fig. 4 dargestellt. Dabei zeigt es sich, daß nicht nur der Verlauf der Meßkurve dem der berechneten Kurvenschar entspricht, sondern daß auch der a -Wert, der der Meßkurve zuzuordnen ist, gut mit Werten anderer Autoren (z.B. DOSTROVSKY²⁸, ALBERT¹⁶) übereinstimmt. Erst bei hohen Energien

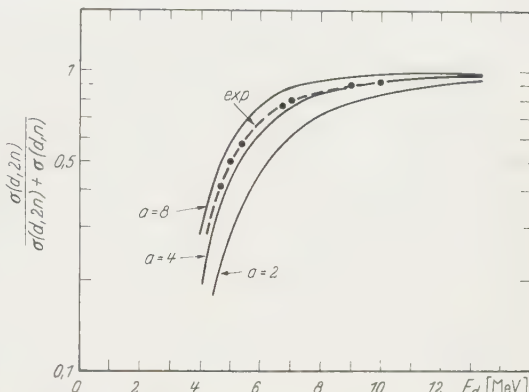


Fig. 4. $\sigma_{d, 2n}/(\sigma_{d, 2n} + \sigma_{d, n})$ für Zr^{96} in Abhängigkeit von der Deuteronenenergie nach der statistischen Theorie gerechnet für $a = 2, 4$ und 8 MeV^{-1} . Gestrichelte Kurve: Meßwerte ($a_{\text{exp}} \approx 5,5$)

Das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte $\sigma(d, 2n)/\{\sigma(d, 2n) + \sigma(d, n)\}$ wurde nach der statistischen Theorie wieder für verschiedene Werte des Parameters a berechnet und ist zusammen mit den aus absoluten Aktivitätsmessungen erhaltenen Meßwerten in Fig. 4 dargestellt. Dabei zeigt es sich, daß nicht nur der Verlauf der Meßkurve dem der berechneten Kurvenschar entspricht, sondern daß auch der a -Wert, der der Meßkurve zuzuordnen ist, gut mit Werten anderer Autoren (z.B. DOSTROVSKY²⁸, ALBERT¹⁶) übereinstimmt. Erst bei hohen Energien

tritt eine Abweichung auf, die auf einen zu großen (d, n) -Wirkungsquerschnitt hinweist und als Beitrag direkter Reaktionen anzusehen ist. Die gute Übereinstimmung mit den Voraussagen der Theorie läßt darauf schließen, daß das primäre Neutronenspektrum überwiegend die Form eines Verdampfungsspektrums hat. Da durch die direkte Reaktion im Gegensatz zur Kompoundkern-Reaktion die tiefliegenden Niveaus des Endkerns bevorzugt besetzt werden, das entsprechende Neutronenspektrum daher von einem Verdampfungsspektrum stark verschieden ist, läßt sich das Meßergebnis im Sinne eines dominierenden (d, n) -Kompoundkern-Anteils interpretieren. Der bei hohen Energien verbleibende (d, n) -Querschnitt ermöglicht die Abschätzung des direkten Anteils zu $\sim 10\%$ der gesamten $(d, n) + (d, 2n)$ -Reaktion bei 10 MeV.

Die Meßwerte für die Quotienten $\sigma(d, n)/\sigma(d, p)$ und $\{\sigma(d, 2n) + \sigma(d, n)\}/\sigma(d, p)$ sind in Fig. 2 in Abhängigkeit von der Deuteronenenergie aufgetragen. Das Verhältnis von (d, n) - zu (d, p) -Reaktion an Zr^{96} zeigt zunächst einen Anstieg, der qualitativ so verstanden werden kann, daß bei kleinen Energien die Coulomb-Abstoßung für die (d, n) -Reaktion (Kompoundkern-Prozeß) ein stärkeres Hindernis darstellt als für die (d, p) -Reaktion (Stripping-Prozeß), bei der das Proton außerhalb des Kerns bleibt. Infolge der Konkurrenz der $(d, 2n)$ -Reaktion fällt das $(d, n)/(d, p)$ -Verhältnis oberhalb der $(d, 2n)$ -Schwelle wieder ab. An Zr^{96} ist die Kurve wegen der Q -Wert-Differenz der beiden $(d, 2n)$ -Reaktionen um etwa 1 MeV nach kleineren Energien hin verschoben. Der Anstieg ist deshalb nicht zu beobachten. Die beiden Meßkurven zeigen bei Berücksichtigung dieser Verschiebung jedoch völlige Übereinstimmung.

Der Quotient $\{\sigma(d, 2n) + \sigma(d, n)\}/\sigma(d, p)$ stellt eine obere Grenze für das Verhältnis von Kompoundkern- zu direkter Reaktion dar. Das tatsächliche Verhältnis kann man abschätzen, wenn man die nicht beobachteten Reaktionen berücksichtigt: $(d, \alpha)^{41}$ und (d, d') -Reaktionen⁴² sind wegen der kleinen Wirkungsquerschnitte zu vernachlässigen. Dagegen muß berücksichtigt werden, daß der (d, p) -Wirkungsquerschnitt durch sekundäre Neutronenemission (d, pn -Reaktion) reduziert wird, wenn auch wesentlich schwächer als der (d, n) -Querschnitt, da die (d, p) -Reaktion als direkte Reaktion bevorzugt in tiefliegende Niveaus führt, die unterhalb der (d, pn) -Schwelle liegen. Aus Protonenspektren, die von anderen Autoren^{43, 44, 45} bei (d, p) -Reaktionen an natürlichem Zirkonium und an benachbarten Elementen

⁴¹ ANDERS, O. U., and W. W. MEINKE: Phys. Rev. **120**, 2114 (1960).

⁴² VATER, O., u. U. SCHMIDT-ROHR: Persönliche Mitteilung.

⁴³ COHEN, B. L., J. B. MEAD, R. E. PRICE, K. S. QUISENBERRY and C. MARTZ: Phys. Rev. **118**, 499 (1960).

⁴⁴ HAMBURGER, E. W., B. L. COHEN and R. E. PRICE: Phys. Rev. **121**, 1143 (1961).

⁴⁵ TUREK, P., u. U. SCHMIDT-ROHR: Physiker-Tagung Bad Nauheim, 1961.

gemessen wurden, kann man den (d, pn) -Wirkungsquerschnitt abschätzen. Er ist bei 10 MeV etwa von gleicher Größe wie der (d, p) -Querschnitt und nimmt nach kleineren Energien hin stark ab. Der aus der Aufspaltung des Deuterons außerhalb des Kerns resultierende (d, pn) -Querschnitt^{44,45} ist dabei nicht berücksichtigt.

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß bei beiden untersuchten Kernen im gemessenen Energiebereich oberhalb 5 MeV der Compoundkern-Prozeß dominiert. Dieses Ergebnis an Zr^{94} und Zr^{96} ist besonders auch im Hinblick auf das an Zn^{64} gemessene $\sigma(d, n)/\sigma(d, p)$ -Verhältnis¹ bemerkenswert, das mit einem oberhalb 6 MeV konstanten Wert von nur 0,16 auf einen hohen direkten Anteil schließen läßt. Rechnungen nach der statistischen Theorie wurden auch für Zn^{64} durchgeführt, sind aber wegen der Unsicherheit der Parameter, die hier stärker ins Gewicht fällt, nicht zuverlässig und sollen daher nicht weiter diskutiert werden. Die Ursache für die verschiedenen Verhältnisse steht vermutlich mit dem gegenüber Zn^{64} wesentlich größeren Neutronenüberschuß von Zr^{94} und Zr^{96} und der Lage auf gegenüberliegenden Seiten des Energietals der Isotope in Zusammenhang. Zur Klärung dieser Frage wird versucht, weitere Information an anderen Kernen zu gewinnen.

Herrn Prof. Dr. W. GENTNER danke ich herzlich für sein förderndes Interesse an dieser Arbeit, Herrn Prof. Dr. U. SCHMIDT-ROHR für seine freundliche Unterstützung bei den Zyklotron-Bestrahlungen und für zahlreiche Diskussionen.

Aus dem Physikalischen Institut der Ohio State University, Columbus, Ohio, USA

Warum interferieren die Wahrscheinlichkeiten?

Von

ALFRED LANDÉ

(Eingegangen am 17. Juli 1961)

The wavelike interference law connecting various transition probabilities, usually taken as the expression of a basic and irreducible quantum dualism, is derived as a consequence of the postulate that a general connection law between the probabilities exists at all, together with requirements of symmetry, invariance, and other features of a non-wavelike nature. Duality is thus divested of its fundamental character, and a way is found to understand quantum mechanics on a non-quantal basis.

1. Auf die Frage nach dem Grund der Wahrscheinlichkeitsinterferenz hört man zwei Antworten. Erstens, die Physik habe gar nicht zu erklären, „warum“ gewisse Naturgesetze gelten; sie müsse sich vielmehr mit geordneter Beschreibung begnügen. Dieser Ansicht widerspricht aber die Erklärungsfolge KOPERNIKUS-KEPLER-NEWTON-EINSTEIN. Und die Quantentheorie ist heute bestenfalls im Kepler-Stadium angekommen. Deshalb ist auch die zweite Antwort, die Wellenregeln der Partikelmechanik seien eben der Ausdruck eines Grundprinzips der Dualität, nicht befriedigend. Denn die Berufung auf Dualität ist in diesem Zusammenhange ebenso tautologisch, wie etwa der Hinweis auf ein horror-vacui-Prinzip angesichts der Schwierigkeit, leere Räume herzustellen. Was wir als „Erklärung“ brauchen ist vielmehr eine Zurückführung der befremdenden wellenähnlichen Regeln der Teilchenmechanik auf einfache und plausible nicht-wellenmäßige Grundsätze. Die im folgenden gegebene dritte Antwort auf die obige Frage lautet nun: Angenommen daß die Wahrscheinlichkeiten überhaupt einem allgemeinen Verknüpfungsgesetz unterliegen, so kann dieses Gesetz unter einfachen Zusatzannahmen, *die nichts mit Wellen zu tun haben*, nur das der wellenähnlichen Interferenz sein. Die Interferenz kann dadurch als mathematische Notwendigkeit *verstanden* werden, statt daß man sie als merkwürdiges Naturspiel anzunehmen hat.

2. Zunächst einige Bemerkungen über die Wahrscheinlichkeiten selbst, ohne Rücksicht auf ein gegenseitiges Verknüpfungsgesetz. Verschiedene Beobachtungsgrößen A, B, C, \dots (Ort, Energie, Impuls, ...) mögen für ein gegebenes mechanisches System (Atom) gewisser Wertereihen $A_1 A_2 \dots A_M$ und $B_1 B_2 \dots B_N$, usw. fähig sein. Wie groß diese „Eigenwerte“ sind, und ob sie diskret oder kontinuierlich verteilt sind, interessiert uns hier nicht. Nur mögen die Multiplizitäten M und N

der Wertereihen als *endlich* angenommen werden, um mathematische Schwierigkeiten zu vermeiden.

Angenommen nun, daß eine A -Messung den Zustand A_k des Systems aufzeigt oder besser gesagt *hervorrufft*. Bei darauf folgenden B -Messungen werden die verschiedenen Zustände B_n mit gewissen statistischen Häufigkeiten oder Wahrscheinlichkeiten $W(A_k \rightarrow B_n)$ auftreten. Die experimentell festgestellten Größen W können dann in einer Tabelle von M Zeilen und N Spalten, der Matrix (W_{AB}) , zusammengestellt werden:

$$\begin{pmatrix} W(A_1 \rightarrow B_1) & W(A_1 \rightarrow B_2) & \dots \\ W(A_2 \rightarrow B_1) & W(A_2 \rightarrow B_2) & \dots \\ \dots & \dots & \dots \end{pmatrix} = (W_{AB}). \quad (1)$$

Ähnliche Matrizen lassen sich für die Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen andern Zustandsreihen tabulieren, z. B. (W_{AC}) , (W_{BC}) , usw. Jede *Reihe* von W -Größen summiert sich dann zu Eins auf. Im besonderen ist (W_{AA}) eine Einheitsmatrix, mit Einsen in der Diagonale und Nullen außerhalb. Dasselbe gilt für (W_{BB}) usw.

In Analogie zur Umkehrbarkeit klassisch dynamischer Prozesse führen wir jetzt die *Symmetrieannahme* ein:

$$W(A_k \rightarrow B_n) = W(B_n \rightarrow A_k), \quad \text{oder} \quad (W_{AB}) = (\widetilde{W_{BA}}), \quad (2)$$

so daß die Pfeile von jetzt an fortgelassen werden können. Da nun die Spalten der Matrix (W_{AB}) gleich den Reihen der Matrix (W_{BA}) sind, letztere sich aber zu Eins summieren, gilt dasselbe auch von ersteren. Das heißt in jeder Matrix summieren sich Reihen wie Spalten zu Eins auf. Daher muß die Zahl der Reihen M gleich der Zahl der Spalten N sein. Die W -Matrizen sind also „magische Einheitsquadrate“, woraus folgt, daß die Zustandsreihen A und B und C usw. alle die *gleiche Multiplizität* besitzen. (Dies bedeutet eine starke Einschränkung des Begriffs „Zustand“ in der Quantentheorie.) Zum Beispiel definiert die Lage keinen Zustand, wohl aber die Lage zu einer bestimmten Zeit (r, t) . Denn (r_k, t_A) ist mit (r_n, t_B) durch eine Übergangswahrscheinlichkeit W verknüpft. Ferner ist $W(r_k, t_A; r_l, t_A) = \delta_{kl}$. Zusammenfassend: Aus der Symmetrie (2) folgt

$$\text{die } W\text{-Matrizen sind magische Einheitsquadrate,} \quad (3)$$

$$(W_{AB}) = (\widetilde{W_{BA}}) \quad \text{und dabei} \quad (W_{AA}) = (1). \quad (4)$$

3. Wir machen jetzt die Annahme, daß zwischen den verschiedenen W -Tabellen, d. h. zwischen den magischen Einheitsquadraten (W_{AB}) , (W_{AC}) , (W_{BC}) usw. ein *allgemeines Verbindungsgesetz* besteht, und fragen dann nach möglichen Formen eines solchen Gesetzes. Statt der Matrizen (W) betrachten wir zunächst „Größen“ Φ usw. und führen gleich

die weitere Beschränkung ein, daß das Verknüpfungsgesetz *triangular* sein soll, so daß z.B. Φ_{AC} durch Φ_{AB} und Φ_{BC} bestimmt ist. Entsprechendes soll dann für irgend welche drei Buchstaben in irgend welcher Anordnung gelten. Diese Allgemeinheit bedeutet aber erstens, daß die verbindende Gleichung

$$S(\Phi_{AB} \Phi_{BC} \Phi_{CA}) = 0 \quad \text{oder kurz} \quad S(A, B, C) = 0 \quad (5)$$

symmetrisch in A, B, C sein muß. Zweitens, damit auch bei anderen Buchstaben keine Widersprüche entstehen, muß die Verbindung *transitiv* sein, so daß sich aus den drei Gleichungen

$$S(A, B, C) = 0 \quad \text{und} \quad S(A, B, D) = 0 \quad \text{und} \quad S(A, C, D) = 0$$

die vierte Gleichung $S(B, C, D) = 0$ als *Folge* ergibt. Wir untersuchen nun systematisch alle Fälle, die unter dieser Forderung der Allgemeinheit (Symmetrie und Transitivität) möglich sind.

4. Das einfachste triangulare Gesetz lautet

$$\Phi_{AB} + \Phi_{BC} + \Phi_{CA} - K \quad \text{mit konstantem } K. \quad (6)$$

Es ist in der Tat symmetrisch gegenüber Buchstabenvertauschungen sowie auch transitiv. Anwendung auf den Sonderfall $A = B = C$ ergibt als Nebenbedingung

$$\Phi_{AA} = \frac{1}{3}K, \quad \text{und dann} \quad \Phi_{AB} + \Phi_{BA} = \frac{2}{3}K. \quad (6')$$

Besonders einfach ist der Fall $K = 0$, wo

$$\Phi_{AB} + \Phi_{BC} + \Phi_{CA} = 0 \quad \text{mit} \quad \Phi_{AA} = 0 \quad \text{und} \quad \Phi_{AB} = -\Phi_{BA}. \quad (7)$$

Die nächst einfache symmetrisch triangulare Verbindung ist *zweiten Grades* und lautet (wir nennen die Größen jetzt X):

$$X_{AB}X_{BC} + X_{BC}X_{CA} + X_{CA}X_{AB} = L = \text{konst.}$$

zugleich mit

$$X_{AA} = \sqrt[3]{L/3} \quad \text{und} \quad X_{BA} = (L - \sqrt[3]{L/3} X_{BA}) / (\sqrt[3]{L/3} + X_{BA}).$$

Dies ist zwar eine symmetrische, aber so verwickelte Gleichung zwischen X_{AB} und X_{BA} , daß jede Beziehung zu dem gesuchten Gesetz für $(W_{AB}) = (\widetilde{IV_{B,A}})$ ausgeschlossen ist, ganz abgesehen von Zweifeln über die Transitivität der obigen X -Verbindung. Und der einfache Fall $L = 0$ kann nur durch Verschwinden aller X -Werte erfüllt werden. Ähnlich ist es mit anderen X -Kombinationen zweiten Grades, die hier nicht hingeschrieben zu werden brauchen.

Der nächste Fall einer triangularen und symmetrischen Verbindung ist *dritten Grades*, nämlich das Produkt

$$\Psi_{AB} \cdot \Psi_{BC} \cdot \Psi_{CA} = G \quad \text{mit konstantem } G. \quad (8)$$

Es ist im wesentlichen identisch mit dem Additionsgesetz (6), aus dem es durch $\Psi = e^\Phi$ und $G = e^K$ hervorgeht. (8) verlangt im besonderen

$$\Psi_{AA} = G^{\frac{1}{2}} \quad \text{und} \quad \Psi_{AB} \cdot \Psi_{BA} = G^{\frac{2}{3}} \quad (8')$$

Für $K=0$, also $G=1$ erhält man die einfachere Form

$$\Psi_{AB} \Psi_{BC} \Psi_{CA} = 1 \quad (9)$$

oder anders geschrieben

$$\Psi_{AC} = \Psi_{AB} \cdot \Psi_{BC} \quad \text{mit} \quad \Psi_{AA} = 1 \quad \text{und} \quad \Psi_{AB} \cdot \Psi_{BA} = 1. \quad (9')$$

In ähnlicher Weise kann man symmetrische Verbindungsgesetze vierten und höheren Grades konstruieren und auf Transitivität untersuchen. Die dabei auftretenden Beziehungen zwischen X_{AB} und X_{BA} sind dabei noch verwickelter als im obigen Falle zweiten Grades. Als Muster für ein allgemeines Verknüpfungsgesetz zwischen den magischen Einheitsquadraten (3), (4) bleibt also nur (6) und (8) bzw. (7) und (9) übrig, wodurch unser Problem sehr erleichtert ist.

5. Von den „Größen“ Φ , X , Ψ im allgemeinen wenden wir uns jetzt den quadratischen Matrizen (W) gemeinsamer Multiplizität M^2 zu, für welche ja ebenfalls die Addition und Multiplikation in bekannter Weise definiert ist. Setzt man nun (W) in obige Gesetze für Φ , X , Ψ ein, so zeigt sich, daß weder sie, noch die nicht hingeschriebenen Gesetze höheren Grades, die magische Quadrategie invariant lassen. Somit erhält man das Resultat, daß die Wahrscheinlichkeiten überhaupt nicht durch ein eindeutiges trigonales Gesetz verbunden werden können. Hält man also an der Forderung eines allgemeinen trigonalen Verknüpfungsgesetzes fest, so muß man mit einem *mehrdeutigen Gesetz* zufrieden sein.

Durch dieses Ergebnis wird aber unser Problem wieder recht unbestimmt — außer wenn wir eine neue einschränkende Bedingung einführen. Wir wollen nun postulieren, daß die gesuchte mehrdeutige Verbindung zwischen den W -Matrizen auf einem der eindeutigen Gesetze als Unterbau gegründet ist. Die Mehrdeutigkeit könnte dann entweder durch eine quadratische oder kubische oder höher-gradige Verbindung zwischen W und Φ oder X oder Ψ usw. zustandekommen.

6. Damit ist aber die Lösung unseres Problems sofort angezeigt. Denn man erhält eine Beziehung zwischen magischen Einheitsquadraten dann, und nur dann (unter den obigen Einschränkungen), wenn man die eindeutige Ψ -Verbindung (9') für Matrizen

$$(\Psi_{AC}) = (\Psi_{AB}) \cdot (\Psi_{BC}) \quad \text{mit} \quad (\Psi_{AA}) = (1) \quad \text{und} \quad (\Psi_{AB}) \cdot (\Psi_{BA}) = (1) \quad (10)$$

als Unterbau benutzt und dann, im Fall *reeller* Ψ , die Beziehung

$$W = \Psi^2 \quad \text{mit} \quad \Psi(A_k \rightarrow B_n) = \Psi(B_n \rightarrow A_k), \quad (11)$$

und im Fall *komplexer* Ψ (* bedeutet komplex-konjugiert)

$$W = |\Psi|^2 \quad \text{mit} \quad \Psi(A_k \rightarrow B_n) = \Psi^*(B_n \rightarrow A_k) \quad (11')$$

einführt. (11) ist als *orthogonale Transformation* und (11') als deren Verallgemeinerung zur *unitären Transformation* bekannt. (11') ist aber identisch mit dem *Interferenzgesetz* der Wahrscheinlichkeitsamplituden Ψ , das die Gründer der Quantenmechanik nach 25jährigem Suchen durch geniale Intuition gefunden haben und jetzt als ein weiterhin nicht erklärbares Grundgesetz anzusehen pflegen. Es ist gewiß kein Kunststück, nachträglich zu zeigen, daß man zum gleichen Ergebnis auch durch formale, beinahe aprioristische Betrachtungen hätte kommen können. Wenn aber „Erklärung“ gleichbedeutend mit einer Zurückführung von merkwürdigen Naturgesetzen auf einfache und allgemeine Grundforderungen ist, so mag die in der Überschrift genannte Frage als beantwortet gelten. Dabei sei bemerkt, daß keine der obigen Einschränkungen* (Triangularität und eindeutiger Unterbau) irgend etwas wellenartiges enthält, und trotzdem die wellenähnliche Interferenz resultiert.

7. Ähnliches gilt von der Frage: „Warum besteht ein *periodischer* Zusammenhang zwischen Orts- und Impulskoordinaten, wie er sich in der Wellenfunktion $\Psi(q, p) = \exp(2i\pi qp/h)$ ausdrückt?“. Es ist die Frage nach dem Grunde der Quanten-Dynamik. Die Antwort wurde vor kurzem in dieser Zeitschrift auf Grund einer einfachen Invarianzforderung für q und p gegeben¹. Zusammenfassend läßt sich deshalb sagen, daß man zur Rechtfertigung des wellenhaften statistischen Verhaltens der Materie sich keineswegs auf ein beschreibendes „Prinzip“ der Dualität zu berufen braucht. Der Wellencharakter der Quantentheorie kann vielmehr aus Postulaten der Symmetrie, Invarianz und anderen *nicht-wellenartigen* Zusatzforderungen hergeleitet werden². Eine Dualität zwischen Teilchen und Wellen ist übrigens seit der statistischen Deutung (DUANE 1923 und BORN 1926) unlogisch geworden als ein Gegensatz zwischen Dingen (wie z.B. Kranken) und *einer* ihrer vielen Eigenschaften (der wellenförmigen statistischen Epidemiekurve).

* Es wäre möglich, daß die Forderung eines allgemeinen Verknüpfungsgesetzes zwischen magischen Einheitsquadraten als Lösung *nur* die der unitären Transformation zuläßt, ohne daß man ausdrücklich die Einschränkung auf Trigonalität und eindeutigen Unterbau einzuführen braucht — obwohl sich diese Behauptung schwer beweisen lassen wird.

¹ LANDÉ, A.: Z. Physik **162**, 410 (1961). — Statt der Druckfehler $b(q)$ in (6) und $\beta(q)$ vor (7) lies $b(p)$ und $\beta(p)$.

² LANDÉ, A.: From Dualism to Unity in Quantum Theory. Cambridge: The University Press 1960.

OSRAM-Studiengesellschaft für elektrische Beleuchtung, Augsburg

Zur Feldbogentheorie bei kalten, verdampfenden Kathoden. I

Von

A. BAUER

Mit 4 Figuren im Text

(Eingegangen am 10. Juni 1961)

Mit der Feldbogentheorie wird eine Beschreibung der Vorgänge an kalten, verdampfenden Metallkathoden gegeben. Im ersten Teil der Arbeit wird das Kanalmodell zugrunde gelegt. Die hohe Stromdichte in dem kleinen Gasvolumen des Brennflecks bedingt extrem hohe Teilchendichten. Die Druck- und Impulsverhältnisse werden diskutiert. Ferner wird auf den kathodischen Gasstrahl und auf die Rückstoßkräfte auf die Kathode bei den verschiedenen Gasdrücken näher eingegangen.

1. Einleitung

Der Ansatz eines Lichtbogens an kalten, verdampfenden Metallkathoden hat die folgenden typischen Eigenschaften: Er führt eine extrem hohe Stromdichte, spaltet bei höherer Stromstärke in mehrere Brennflecke auf, welche meist rasch und unregelmäßig über die Kathodenoberfläche wandern. Im stärkeren Magnetfeld ist die Brennfleckbewegung rückläufig, d.h. entgegen der Ampereschen Regel. Wenn die Versorgungsspannung auch nur 10^{-9} bis 10^{-8} sec lang ausbleibt, verlöscht der Bogen.

Die meisten Erfahrungen über diesen Bogentyp wurden an dem Kathodenmetall mit dem tiefsten Siedepunkt, an Quecksilber, gesammelt. Hier war man von vornherein sicher, daß die Kathodentemperaturen im Brennfleck keine nennenswerte Thermoemission von Elektronen erlauben, daß also hier kein thermischer Bogen brennen kann. Zur Erklärung der kathodischen Vorgänge, die zu den hohen Stromdichten führen können, bieten sich an: 1. die Feldbogentheorie¹, nach der die Feldemission den wesentlichen Stromanteil vor der Kathode bildet, 2. die Ionenstromtheorie², der zufolge eine Elektronenemission der Kathode zwar möglich, aber nicht entscheidend ist, 3. die „Excitation Theory“³, nach der diejenigen Elektronen den wesentlichen Stromanteil liefern, die durch angeregte Atome aus der Kathode herausgelöst werden. Von den zahlreichen hier anzuführenden Literaturstellen sind nur die neueren zitiert, welche weitere Quellennachweise enthalten.

¹ WASSERRAB, TH.: Z. Physik **130**, 311 (1951).

² ECKER, G.: Z. Physik **136**, 556 (1954).

³ ENGEL, A. v., u. A. E. ROBSON: Proc. Roy. Soc., Lond. A **242**, 217 (1957).

Lange Zeit konnte die Feldbogentheorie nicht ganz befriedigen, weil die Abschätzungen der Feldstärke an ebener Kathode eine geringere Feldemission ergaben, als es der Beobachtung entsprach. G. ECKER und K. G. MÜLLER⁴ berücksichtigten neuerdings die individuelle Feldkomponente der Raumladung vor der Kathode, welche sich dem mittleren Feld so stark überlagert, daß nunmehr eine ausreichende Feldemission gesichert erscheint.

Darum soll im folgenden mit der Feldbogentheorie eine Erklärung der aufgeführten kathodischen Erscheinungen gegeben werden, wobei zunächst einige Vereinfachungen nötig sind. Im ersten Teil dieser Arbeit werden die Verhältnisse hauptsächlich vor der Quecksilberkathode beschrieben, wie sie längs der Entladungsachse herrschen. Hierbei wird das Kanalmodell mit über den Entladungsquerschnitt konstanten Parametern zugrunde gelegt.

2. Die kathodische Stromdichte

Für die Theorie des Bogens ist die Kenntnis der kathodischen Stromdichte von entscheidender Bedeutung. Bei der Beobachtung der Stromdichten an kalten Kathoden, besonders an der Hg-Kathode, traten im Laufe der Entwicklung große Differenzen auf, die hauptsächlich durch die rasche Bewegung des Brennflecks verursacht wurden. Erst die neueren von K. D. FROOME^{5,6} mit verfeinerten optischen Meßmethoden bei Beobachtungszeiten von 0,1 bis 6 μ sec gewonnenen Ergebnisse konnten den wahren Verhältnissen nahekommen. K. D. FROOME arbeitete zwar aus technischen Gründen hauptsächlich mit kurzzeitigen Entladungen. Die von ihm zuletzt angegebenen Grenzen für die Stromdichte an Hg-Kathoden $2 \cdot 10^6$ bis 10^7 A/cm² gelten jedoch auch für stationär brennende Bögen. Diese aus sorgfältigen Messungen gewonnenen für die Theorie ausschlaggebenden Daten werden zwar noch angezweifelt³, K. D. FROOME⁷ führt aber stichhaltige Gründe gegen diese Zweifel an.

3. Das Kanalmodell von Kathodenfall und Ionisationsgebiet

Um eine erste gröbere Vorstellung von den Vorgängen vor der Kathode zu geben, sollen zunächst die folgenden Vereinfachungen vorgenommen werden: In der Fallzone unmittelbar vor der Kathode wird freier Flug der Ladungsträger angenommen. Der daran anschließende Ionisationsraum sei quasineutral. Die Entladungsparameter in beiden Zonen seien über den Entladungsquerschnitt konstant (Kanalmodell).

⁴ ECKER, G., u. K. G. MÜLLER: Z. Naturforsch. **14a**, 511 (1959).

⁵ FROOME, K. D.: Proc. Phys. Soc., Lond. **60**, 424 (1948).

⁶ FROOME, K. D.: Proc. Phys. Soc., Lond. **62**, 805 (1949).

⁷ FROOME, K. D.: Brit. J. Appl. Phys. **4**, 91 (1953).

Für die Quecksilberkathode, die im folgenden hauptsächlich betrachtet wird, zeigten G. ECKER und K. G. MÜLLER⁴, daß die Schottky'sche Feldbogentheorie zutrifft, wenn die von K. D. FROOME gemessenen kathodischen Stromdichten zugrunde gelegt werden. Ein quantitativ exakter Nachweis ist vorerst wohl nicht möglich, weil die Messungen nur die Größenordnung der kathodischen Stromdichte liefern können, einige physikalische Konstanten nicht genau genug bekannt sind und die verwickelten Vorgänge einer genauen Berechnung noch nicht zugänglich sind.

Es ist sicher, daß das Verhältnis von Elektronenstrom zu Ionenstrom im Kathodenfall erheblich kleiner ist, als in der freien positiven Säule, wo es im Hg-Bogen z. B. $I_e/I_i \approx 600$ beträgt. Darum muß praktisch der gesamte im Fallgebiet fließende Ionenstrom in der vorgelagerten Plasmaschicht, dem Ionisationsgebiet, erzeugt werden.

Das Verhältnis I_e/I_i im Kathodenfall läßt sich aus einer Energiebilanz gewinnen. Unter Vernachlässigung der Feinheiten lautet diese Bilanz: Kathodenfalleistung des Elektronenstromes = Ionisierungsleistung: $I_e U_k = I_i U_i$. Das hieraus folgende Verhältnis I_e/I_i stellt zufolge einer früheren Arbeit⁸ einen Mindestwert dar. Für den Hg-Bogen mit $U_i = 10,4$ V und $U_k = 8$ V⁹ wird der abgerundete Wert $I_e/I_i = 1,5$ eher zutreffen. Im Ionenstrom I_i wird die Hg-Masse $I_i M/e$ befördert (M = Masse des Hg-Ions, e = el. Elementarquantum), also pro ein Ampere Gesamtstromstärke ($I_e + I_i$) die Hg-Masse $I_i M/(e(I_e + I_i)) \approx 10^{-3}$ g/As. Schon TH. WASSERRAB wie auch A. V. ENGEL und A. E. ROBSON haben diesen Teilchenstrom mit dem beobachteten Nettodampfstrom von etwa 10^{-4} g/As^{10,11} verglichen und auf die Notwendigkeit hingewiesen, zwischen Brutto- und Nettoverdampfung zu unterscheiden. Rund 90% des Bruttodampfstromes, der die Kathode verläßt, wird demnach im Ionisationsgebiet ionisiert und kehrt zur Kathode zurück. Fig. 1 veranschaulicht die verschiedenen Teilchenströme der Kathode. Nimmt man auf

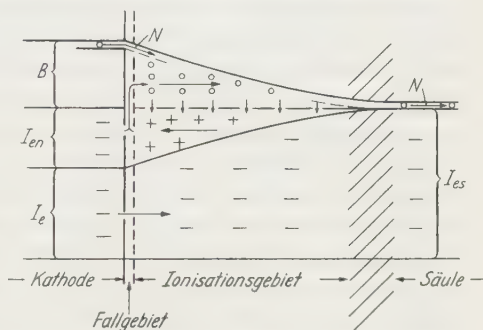


Fig. 1. Schematische Darstellung der Teilchenströme an der kalten, verdampfenden Kathode. B Bruttodampfstrom, N Nettodampfstrom, I_{en} Elektronenstrombedarf zur Neutralisierung des Ionenstromes I_i , I_e Elektronenemissionsstrom, I_{es} Elektronenstrom der Säule. (Die Bandbreiten geben ein Maß für die Stromstärken. Der Ionenstrom der Säule wurde vernachlässigt)

⁸ BAUER, A.: Ann. Phys. (6) **18**, 387 (1956).

⁹ FROOME, K. D.: Nature, Lond. **179**, 267 (1957).

¹⁰ KOBEL, E.: Phys. Rev. **36**, 1636 (1930).

¹¹ TONKS, L.: Phys. Rev. **54**, 634 (1938).

Grund der Beobachtungen von K.D. FROOME die mittlere Gesamtstromdichte $\bar{j} = 5 \cdot 10^6$ A/cm² an, dann folgt aus dem Verhältnis $I_e/I_i = 1,5$ die mittlere Ionenstromdichte $\bar{j}_i = 2 \cdot 10^6$ A/cm² in der Fallzone. Die Poissonsche Gleichung beschreibt, wie wiederholt gezeigt wurde, die Potentialverhältnisse vor der Kathode in brauchbarer Annäherung. Bei freiem Fall der Ladungsträger durch den Kathodenfall U_k ergibt sich mit den üblichen Bezeichnungen der Zusammenhang $j_i = (2e/M)^{1/2} U_k^{3/2} \times (9\pi d^2)$ und mit $U_k = 8$ V die Fallraumdicke $d = 2 \cdot 10^{-7}$ cm. Die hiernach berechnete Feldstärke an der Kathode $E_k = 4 U_k/(3d) = 5 \cdot 10^7$ V/cm erfaßt den Beitrag der kollektiven Raumladungszone. Für die Austrittsarbeit 4,5 eV von Hg ergibt dieses Feld eine Emission, die knapp eine Größenordnung unter dem erforderlichen Wert $j_e = 3 \cdot 10^6$ A/cm² liegt. Wie G. ECKER und K.G. MÜLLER zeigten, ergibt der Feldbeitrag der individuellen Zone eine ausreichende Erhöhung der Emission.

Aus der folgenden Überlegung geht hervor, daß die Fallraumdicke der mittleren freien Weglänge gleich sein muß. Im Fallgebiet ist die Elektronendichte wegen der größeren Elektronengeschwindigkeit weit aus geringer als die Ionendichte. An der Grenze zum Ionisationsgebiet steigt die Elektronendichte so stark an, daß Quasineutralität wenigstens nahezu erreicht wird. Der Elektronenstrom, der sich bei dem Übergang vom Fallgebiet zum Ionisationsgebiet nicht ändert (Fig. 1), ist proportional dem Produkt Driftgeschwindigkeit \times Elektronendichte. Der Übergang Fallgebiet—Ionisationsgebiet wird folglich durch eine starke Verringerung der Driftgeschwindigkeit hervorgerufen. Der gerichtete Impuls, den die Elektronen im Fallgebiet aufnehmen, muß in der Grenzzone durch Stoßprozesse abgegeben werden, um den Umwegfaktor (thermische Geschwindigkeit/Driftgeschwindigkeit), der im Fallgebiet nahe bei 1 liegt, auf die Größenordnung 10^3 im quasineutralen Plasma steigen zu lassen. Diese Grenzzone zwischen Fallgebiet und Ionisationsgebiet hat natürlich eine gewisse Ausdehnung. Eine wichtige Konsequenz dieser Feststellung wird weiter unten gezogen. Der Elektronenimpuls wird in Stößen mit Atomen, Ionen und Elektronen abgegeben. Die entsprechenden mittleren freien Weglängen — im Fall der Wechselwirkung Elektron—Elektron spricht man von der Relaxationsstrecke S — lassen sich berechnen aus:

$$\lambda_{ea} = \frac{1}{n_a Q_{ea}}, \quad (1a)$$

$$\lambda_{ei} = \frac{1}{\ln(k T_e / (e^2 n_i^{1/2}))} \frac{(\hbar T_e)^2}{e^4 n_i}, \quad (1b)$$

$$S = \frac{1}{10} \frac{(\hbar T_e)^2}{e^4 n_e}. \quad (1c)$$

Q_{ea} ist der Querschnitt für Impulsaustausch.

In Gl. (1b) wurde nach H. MAECKER, TH. PETERS und H. SCHENK¹² $Q_{ei} = e^4 / (kT_e)^2 \ln(kT_e / (e^2 n_i^{1/2}))$ gesetzt. Gl. (1c) wurde in einer früheren Arbeit¹³ diskutiert. Eine genauere Betrachtung, wie sie H. SCHIRMER und J. FRIEDRICH¹⁴ durchführten, ist hier unnötig und zu verwickelt. Zur Berechnung dieser Flugstrecken sollen nun die Teilchendichten und die Temperatur des Elektronengases T_e unmittelbar vor der Kathode abgeschätzt werden.

Nach Durchfliegen der Relaxationsstrecke setzen sich die von der Kathode emittierten Elektronen in thermisches Gleichgewicht mit dem Elektronengas der Dichte n_e . Wegen des sofort einsetzenden Energieaustausches hauptsächlich durch unelastische, insbesondere ionisierende Stöße muß die Elektronentemperatur T_e deutlich unter der Temperatur 60000° liegen, welche der Kathodenfallenergie 8 eV entspricht. Bevor die Maxwell-Verteilung gegeben ist, setzt Abkühlung des Elektronengases ein. Durch elastische Stöße mit den schweren Teilchen wird nur sehr wenig Energie abgegeben, so daß T_e andererseits über der Temperatur dieser Teilchen liegt. (Es sei daran erinnert, daß in Hg pro Stoß der Bruchteil $2m/M = 5 \cdot 10^{-6}$ der Elektronenenergie übertragen wird.) Da doppelte Ionisation normalerweise im Brennfleck nicht beobachtet wird, bei starken Magnetfeldern jedoch auftritt, läßt sich $T_e = 25000^\circ$ schätzen. (Näheres Teil II dieser Arbeit.)

Für die Ionendichte n_i haben wir einen Anhalt in der Beziehung $n_i = 4\bar{j}_i / (ev_i)$, die sich aus dem Grenzflächendiffusionsstrom der Ionen zur Kathode ergibt. (v_i = mittlere thermische Geschwindigkeit der Ionen.) Mit der grob geschätzten Iontentemperatur $T_i = 10^4^\circ$ und mit $\bar{j}_i = 2 \cdot 10^6$ A/cm² ergibt sich $n_i = 4 \cdot 10^{20}$ cm⁻³. Dieses Ergebnis ist, wie gezeigt wurde⁸, von Fehlern in der Temperaturschätzung wenig abhängig. Vorerst genügt darum diese grobe Temperaturangabe. Die Dichte der Neutralteilchen n_0 hat gemäß Fig. 1 die gleiche Größenordnung. Die Elektronendichte n_e am Anfang des Ionisationsgebietes wird im Mittel um einen gewissen Betrag unter n_i liegen, da die Quasineutralität erst bei weiteren Abständen von der Kathode voll erreicht sein wird. Schätzt man $n_e = 2 \cdot 10^{20}$ cm⁻³, dann ergeben die Gl. (1) für $T_e = 25000^\circ$ und $Q_{ea} = 2 \cdot 10^{-15}$ cm² die abgerundeten Werte $\lambda_{ea} = 10^{-6}$ cm, $\lambda_{ei} = 10^{-8}$ cm und $S = 10^{-7}$ cm. Die freien Weglängen haben im Mittel die Größenordnung der oben berechneten Fallraumdicke im Einklang mit der zu erfüllenden Forderung.

Der mittlere Ionenabstand bei der Dichte $n_i = 4 \cdot 10^{20}$ cm⁻³ beträgt $n_i^{-1/3} = 1,35 \cdot 10^{-7}$ cm. In dem Kathodenfall, der nach der eingangs definierten Modellvorstellung $2 \cdot 10^{-7}$ cm dick ist, liegt also nahezu nur eine

¹² MAECKER, H., TH. PETERS u. H. SCHENK: Z. Physik **140**, 119 (1955).

¹³ SCHULZ, P., A. BAUER u. P. GERTHSEN: Appl. Sci. Res. B. **5**, 210 (1955).

¹⁴ SCHIRMER, H., u. J. FRIEDRICH: Z. Physik **151**, 174 (1958).

monoatomare Schicht vor, und das Ergebnis der Berechnung eines mittleren Feldes aus der Poisson-Gleichung wird fragwürdig. Da aber im Gegensatz zu unserem Modell der Übergang Fallraum—Ionisationsgebiet kontinuierlich ist und damit eine dickere Raumladungsschicht vorliegt, werden die obigen Abschätzungen ihren Wert behalten. Diese Betrachtung unterstreicht jedenfalls die schon erwähnte Notwendigkeit einer Erfassung der individuellen Zone unmittelbar vor der Kathode⁴.

Ein Elektron mit der Kathodenfallenergie 8 eV kann ein Hg-Atom nicht unmittelbar ionisieren. Erst mit Beginn der thermischen Unord-

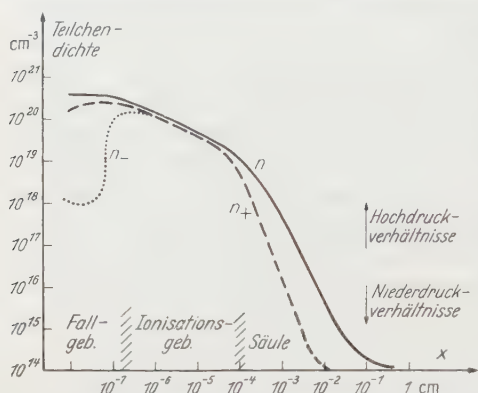


Fig. 2. Geschätzte Dichte der Neutralteilchen, Ionen und Elektronen längs der Entladungssache x in Abhängigkeit von dem Abstand zur Oberfläche der Hg-Kathode

nung der Elektronengeschwindigkeiten werden ionisierende Stöße möglich. Viele der übrigen unelastischen Stöße werden wegen der ungewöhnlichen Energiedichte in Stufenprozessen zur Ionisation führen. Der Energieaustausch führt also zunächst überwiegend zur Ionisation und erstreckt sich über eine Plasmaschicht, für deren Dicke die freie Weglänge für ionisierende Stöße einen Anhalt bietet: $\lambda_i = 1/(n_0 Q_i)$. Für Hg

darf $Q_i = 10^{-16} \text{ cm}^2$ gesetzt werden, so daß mit $n_0 = 4 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ $\lambda_i = 2,5 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$ wird. Wie wir sahen, werden über 90% des die Kathode verlassenden Bruttodampfstromes im Ionisationsgebiet ionisiert, um den Ionenstrom zur Kathode zu bilden. Am Ende dieses Gebietes ist also die Dampfdichte mindestens auf 10% des Ausgangswertes gesunken. Die Dicke des Ionisationsgebietes dürfte also eher bei 10^{-4} cm liegen. Jenseits dieses Gebietes ist ein im folgenden noch näher betrachteter Abfall der Dichte zu erwarten, der etwa mit $1/x^2$ geht (x = Kathodenabstand), bis der Wert 10^{14} cm^{-3} erreicht ist, der im Gefäß des Hg-Vakuumbogens herrscht [vgl. (3)]. Hiernach läßt sich der in Fig. 2 gebrachte ungefähre Verlauf der Teilchendichten über dem Kathodenabstand angeben.

Nun ist noch zu untersuchen, ob die idealen Gasgesetze, die zunächst stillschweigend vorausgesetzt wurden, bei den maximalen Teilchendichten ihre Gültigkeit behalten. Für das Elektronengas ergab die obige Schätzung abgerundet $n_e = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ und $T_e = 20000^\circ$. Der Entartungsparameter (Teilchenzahl/Zustandssumme der Elektronen) beträgt hierfür $P = 0,01$. Das Volumen aller Ionen pro Volumeneinheit in bezug auf Elektronenstöße kann definiert werden zu $n_i Q_{ei}^3$ und beträgt bei

$n_i = 4 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ $n_i Q_{ei}^{\frac{3}{2}} = 0,02$. Auf Grund dieser Verhältnisse wird man zwar bei einer genaueren Betrachtung eine gewisse Entartung berücksichtigen müssen. Die obigen Abschätzungen jedoch dürften noch keine wesentlichen Änderungen erfahren.

4. Druck- und Impulsverhältnisse längs der Entladungsachse

Wie Fig. 1 veranschaulicht, bildet der überwiegende Anteil der schweren Teilchen vor der Kathode einen Kreisstrom, der die Teilchendichte mit kleiner werdendem Kathodenabstand anwachsen läßt. Mit den oben abgeschätzten Daten $T_i = 10^4$ und $n_i = 4 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ergibt sich der Ionendruck $p_i = n_i k T_i = 500 \text{ Atm}$ im Gebiet $x < 10^{-6} \text{ cm}$. Aus der Wärmebilanz der Kathode schließt TH. WASSERRAB¹⁵ auf einen Gesamtdruck von 2000 Atm. Da der Druck der Neutralteilchen und der Elektronen dem der Ionen ähnlich sein wird, bestätigt sich dieser ungewöhnlich hohe Wert. Es entsteht die Frage, wie sich ein derartiger Druck in einer Umgebung sehr geringen Druckes, z.B. im Vakuumbogen, halten kann.

Der Partialdruck der Ionen wird durch eine elektrische Spannung kompensiert, welche entsprechend der oben abgeschätzten Temperatur rund 1 V betragen wird. In dem Ionisationsgebiet der Dicke 10^{-4} cm kann damit ein elektrisches Feld der mittleren Größe 10^4 V/cm dafür sorgen, daß die Ionen nicht dem Konzentrationsgefälle folgend in die Säule abdiffundieren. Das tatsächliche Feld muß jedoch besonders bei kleineren Kathodenabständen größer sein, um eine ausreichende Ionen-drift zur Kathode zu erzwingen. Dieser Ionenstrom zur Kathode bremst den entgegengesetzt gerichteten Bruttodampfstrom ab. Sieht man vom Nettodampfstrom ab, so führt eine genauere Betrachtung zu dem Schluß, daß in Richtung Entladungsachse der Gesamtimpuls der im Kreisstrom wandernden schweren Teilchen durch die elektrischen Kräfte kompensiert wird. Die in dem geschlossenen System hin- und herfliegenden Teilchen dieses Kreisprozesses können infolge des Impulssatzes nach außen hin keinen Impuls abgeben. Träger eines nach außen wirkenden Impulses kann nur der Nettodampfstrom sein, wenn von dem geringfügigen Impuls der Elektronen abgesehen wird. Die elektrischen Kräfte, welche den hohen Druck im Ionisationsgebiet aufrecht erhalten, verlangen nach obigem einen Spannungsabfall längs des Ionisationsgebietes von etwas über 1 V. In der gemessenen Kathodenfallspannung von 8 V^9 muß dieser Spannungsabfall mit enthalten sein, so daß der eigentliche Kathodenfall eher 7 V betragen wird.

Für die Wechselwirkung des Dampfstromes mit dem Ionenstrom ist die freie Weglänge im Ionisationsgebiet mit $\lambda = 10^{21}$ bis 10^{20} cm^{-3} und

¹⁵ WASSERRAB, TH.: Handbuch der Physik, Bd. XXII/II, S. 422. 1956.

$Q_{\text{Hg}} = 10^{-15} \text{ cm}^2$ auf $\lambda = 10^{-6}$ bis 10^{-5} cm abzuschätzen. Die freie Weglänge der Elektronen gegenüber schweren Teilchen ist nach obigem im Mittel etwa $\lambda_{es} = 5 \cdot 10^{-7} \text{ cm}$. Durch elastische Stöße haben die Elektronen bei dem Umwegfaktor 10^3 und dem schon erwähnten Verhältnis $2m/M = 5 \cdot 10^{-6}$ ihre Energie nach der Strecke $x_{el} = 5 \cdot 10^{-7} / (5 \cdot 10^{-6} \cdot 10^3) = 10^{-4} \text{ cm}$ abgegeben. Am Ende des Ionisationsgebietes, etwa bei $x = 10^{-4} \text{ cm}$, haben sich folglich die Teilterperaturen der verschiedenen Plasmapartner weitgehend aneinander angeglichen. Hier kann von einem Hochdruckplasma der einheitlichen Temperatur T_g gesprochen werden. Von diesem Kathodenabstand an setzt sich im Vakuumbogen der Expansion des Dampfes in den Entladungsraum hinein praktisch kein hemmender Gegenstrom von Ionen mehr entgegen. Die Wärmeenergie des Nettodampfstromes, welche der Temperatur T_g entspricht, kann sich nahezu verlustlos in gerichtete Bewegung umsetzen (adiabatische Zustandsänderung).

Wenn diese Überlegungen richtig sind, muß der im Vakuumbogen beobachtete Nettodampfstrahl eine der Temperatur T_g entsprechende Geschwindigkeit besitzen. Diese in der Grenzzone zwischen Ionisationsgebiet und Säule herrschende Temperatur kann über den Ionisierungsgrad grob abgeschätzt werden. Das Plasma wird in dieser Zone nicht wesentlich stärker ionisiert sein als im normalen Hochdruckplasma. Der Ionisierungsgrad wird bei vorsichtiger Schätzung zwischen 5 und 50% liegen. Die dementsprechenden Temperaturgrenzen betragen bei der Dichte 10^{20} cm^{-3} $10500^\circ < T_g < 17500^\circ$.

5. Kathodischer Gasstrahl und Rückstoß auf die Kathode

Auf Grund einer neueren Messung von H. NÖSKE und E. SCHMIDT¹⁶ beträgt die Kathodenstrahlgeschwindigkeit im Hg-Vakuumbogen unabhängig von der Stromstärke $v = 1,3 \cdot 10^5 \text{ cm/sec}$. Dieser Geschwindigkeit entspricht die Temperatur $T_g = 13000^\circ$. Sie liegt innerhalb der oben abgeschätzten Grenzen, womit sich eine zwanglose Erklärung für den Ursprung und die Geschwindigkeit des kathodischen Gasstrahls im Vakuumbogen ergibt.

Die beobachtete Stromstärkeunabhängigkeit der Strahlgeschwindigkeit v erklärt sich aus der Brennfleckform. Der linienförmige Brennfleck ändert bei Stromstärkevariation lediglich seine Länge, bzw. spaltet bei größerer Stromzunahme in zwei und mehr selbständige Brennflecke auf. Eine Änderung von Stromdichte und Dicke der Linie wurde nicht beobachtet. Darum kann auch T_g und damit v keine merkliche Abhängigkeit von der Stromstärke zeigen.

¹⁶ NÖSKE, H., u. E. SCHMIDT: Z. Naturforsch. 7a, 677—682 (1952).

Wie bereits erwähnt, transportiert der von der Hg-Kathode ausgehende Nettodampfstrom pro Amp und sec rund 10^{-4} g Hg. Die schon mehrfach ausgeführte Berechnung des Rückstoßes K_v auf die Kathode aus dem Impuls des Dampfstromes ergibt ganz einfach aus dem Produkt 10^{-4} g/Asec $\times 1,3 \cdot 10^5$ cm/sec die empirische Formel

$$K_v = 13 \cdot I \text{ dyn/Amp} \quad (2)$$

für den Hg-Vakuumbogen. Die von L. TONKS¹⁷ gemessene Rückstoßkraft zeigt gemäß Fig. 3 Nr. 1 zwar nicht ganz die von Gl. (2) geforderte

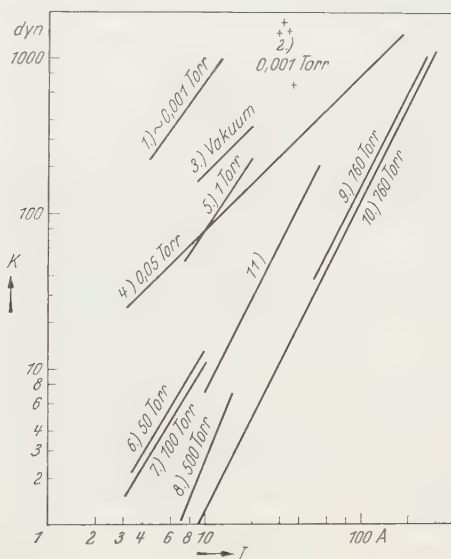


Fig. 3. Rückstoßkraft auf Hg-, Cu- und C-Kathoden bei Bögen in Gasen verschiedenen Druckes

Beobachter:

	Kath.	Gas	Druck
1 L. TONKS (1936)	Hg	Hg	0,014 Torr
2 E. KOBEL (1930)	Hg	Hg	0,001 Torr
3 R. TANBERG (1930)	Cu	Vakuum	
4 E. C. EASTON u. Mitarb. (1934)	Cu	Luft	0,05 Torr
5 R. M. ROBERTSON (1938)	Cu	N ₂	1 Torr
6 R. M. ROBERTSON	Cu	H ₂	50 Torr
7 R. M. ROBERTSON	Cu	H ₂	100 Torr
8 R. M. ROBERTSON	Cu	N ₂	500 Torr
9 A. BAUER (1958)	Cu	Luft	760 Torr
10 MAECKER (1955)	C	Luft	760 Torr
11 Theoretisch nach H. MAECKER bei Kontraktion von $j_8 = 10 \text{ A/cm}^2$ auf $j = 10^7 \text{ A/cm}^2$			

Proportionalität zu I ; wenn man aber die Messungen von E. KOBEL¹⁰ mit einbezieht (Fig. 3 Nr. 2), dann trifft Gl. (2) in grober Näherung zu. Hiermit ist der Ursprung des Rückstoßes im Hg-Vakuumbogen geklärt. Der Vakuumbogen an Cu-Kathode gehört ebenfalls zu dem behandelten Bogentyp. Die kathodische Stromdichte nimmt hier ganz ähnliche

¹⁷ TONKS, L.: Phys. Rev. **50**, 226 (1936).

Werte an wie an Hg-Kathode⁵. Die verdampfte Netto-Cu-Menge beträgt 10^{-5} bis 10^{-4} g/Asec^{18,19}, scheint also etwas geringer zu sein als bei Hg. Wahrscheinlich ist darum der beobachtete Rückstoß im Cu-Vakuumbogen geringer (Fig. 3 Nr. 3). Über die Dampfstrahlgeschwindigkeit des Cu-Bogens liegt kein Meßergebnis vor.

Bei höherem Druck, etwa bei 1 Atm, im Entladungsraum fand H. MAECKER²⁰ in der eigenmagnetischen Kompression eine befriedigende Erklärung für die Rückstoßkraft und im Falle des Kohlebogens Fig. 3 Nr. 10 gute Übereinstimmung zwischen Beobachtung und Theorie. Unter Vernachlässigung gewisser Strömungen gewann er den einfachen Zusammenhang

$$K_e = \frac{I^2}{c^2} \ln \frac{r_s}{r_a} \quad (3)$$

(c = Lichtgeschwindigkeit, r_s = Radius der Bogensäule, r_a = Radius des Brennflecks).

Der an verdampfender Kathode gemäß Gl. (2) auftretende Rückstoß entwickelt sich an normal belasteter C-Kathode vermutlich nicht, weil an dieser Kathode keine nennenswerte Verdampfung auftritt. Zur Erklärung der übrigen Kurven der Fig. 3 muß weiter ausgeholt werden.

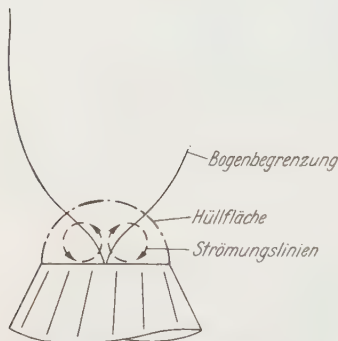


Fig. 4. Schematische Darstellung eines vor der Kathode stark kontrahierten Hochdruckbogens

Da das Verhältnis r_s/r_a der Gl. (3) ein Maß für die kathodische Kontraktion ist, müßte ein Bogen mit stärkerer Kontraktion einen größeren Rückstoß ergeben. Ein Bogen schnürt sich vor einer Cu-Kathode, z. B. bei 1 Atm, wesentlich stärker ein als vor einer C-Kathode. Für die abgerundeten Stromdichten in der Säule $j_s = 10$ Amp/cm² und an der Cu-Kathode $j = 10^7$ Amp/cm² ergibt Gl. (3) die Kurve II in Fig. 3. Die an

Cu-Kathode gemessenen Rückstoßkräfte (Kurve 9)²¹ liegen jedoch erheblich tiefer. Die Erklärung für diese Diskrepanz ist einfach.

Während der von H. MAECKER untersuchte Bogenansatz praktisch die ganze Stirnfläche der Kohlekathode bedeckt, ist der Brennfleck an Cu-Kathode um mehrere Größenordnungen kleiner als eine normale Kathodenstirnfläche. Wie Fig. 4 zeigt, wird bei höherem Druck im Entladungsgefäß der Teil des Gasstromes, dessen Ursprung nahe der

¹⁸ TANBERG, R.: Phys. Rev. **35**, 1080 (1930).

¹⁹ ROBERTSON, R. M.: Phys. Rev. **53**, 578 (1938).

²⁰ MAECKER, H.: Z. Physik **141**, 198 (1955).

²¹ BAUER, A.: Phys. Verh. **9**, 212 (1958).

Kathodenoberfläche liegt, eine Rückströmung in der Umgebung des Bogens verursachen. Innerhalb einer bestimmten Hüllfläche, die wie Fig. 4 zeigt, am Rand der Kathodenstirnfläche aufsetzen wird, bilden sich Kreis- und Wirbelströme aus. Die Impulse dieser Ströme innerhalb der Hüllfläche müssen sich aus leicht ersichtlichen Gründen gegenseitig derart aufheben, daß für den Rückstoß auf die Kathode keine Kraftkomponente resultiert. Lediglich der Impuls des Teils der Gasströmung außerhalb der Hüllfläche erzeugt den Rückstoß auf die Kathode. Für den meßbaren Rückstoß ist es also gleichgültig, welche Impulse innerhalb dieser Hüllfläche auftreten. Dies gilt natürlich auch für den Impuls des Nettodampfstromes gemäß Gl. (2), der bei hohem Gasdruck innerhalb der Hüllfläche kompensiert und aufgezehrt wird. Die Stirnfläche der Cu-Kathode, deren Rückstoß die Kurve 9 der Fig. 3 ergab, hatte etwa die Größe der von H. MAECKER vermessenen Kohlekathode. Damit haben die Hüllflächen beider Kathodenarten ähnliche Dimensionen. Folglich haben im Einklang mit der Beobachtung auch die Rückstoßkräfte etwa die gleiche Größe.

Mit fallendem Gasdruck im Entladungsraum muß es einen kontinuierlichen Übergang geben von dem Rückstoß des Hochdruckbogens zu dem Rückstoß im Vakuumbogen, in dem sich der Nettodampfstrom praktisch unbehindert in den Entladungsraum ausdehnt und so den vollen Rückstoß gemäß Gl. (3) entwickelt.

Hiermit ist eine qualitative Erklärung auch für die in Fig. 3 Kurve 4²² bis 8 eingezeichneten Rückstoßkräfte gegeben.

²² EASTON, E. C., F. B. LUCAS u. F. CREEDY: *Electr. Engng.* **53**, 1454 (1934).

Aus dem Physikalischen Institut der Technischen Hochschule Prag

Das Gravitationsfeld eines Massenpunktes im expandierenden Kosmos

Von

JAROSLAV PACHNER

(Eingegangen am 12. Juni 1961)

Die Feldgleichungen der relativistischen Kosmologie werden unter der Bedingung gelöst, daß ein singularer Punkt sich im expandierenden Kosmos befindet. Auf Grund der Ergebnisse dieser Berechnung wird dann die Frage von der Relativität der Trägheit diskutiert.

Einführung

Die allgemeine Relativitätstheorie wird für ein Musterbeispiel einer reinen Feldtheorie gehalten. Und doch haftet eine kleine Unvollkommenheit an ihn: die Trägheit der Körper wird durch das Gravitationsfeld nur sehr schwach beeinflußt und im Gegensatz zu EINSTEINS Erwartungen nimmt sie in unendlicher Entfernung von gravitationserzeugenden Massen nicht gegen Null ab. Eine ausführliche Auseinandersetzung dieses Problems findet man in einer interessanten Arbeit von DEHNEN, HÖNL und WESTPFAHL¹.

Um diese Frage weiter zu klären, werden wir in der vorliegenden Arbeit das kugelsymmetrische Gravitationsfeld im gekrümmten und expandierenden Weltraum untersuchen. Dabei gehen wir von den Feldgleichungen der allgemeinen Relativitätstheorie ohne das kosmologische Glied aus, wie dies in den vorangehenden Aufsätzen des Verfassers²) gerechtfertigt ist. Im Unterschied zu den Arbeiten von Frau SOERGEL-FABRICIUS³, die die Frage der Relativität der Trägheit von anderem Standpunkt aus im Einstein-Kosmos erörterte, werden wir ein beliebig expandierendes Weltall in Betracht nehmen.

Die Feldgleichungen

Wir setzen eine räumlich isotrope Metrik voraus

$$ds^2 = - e^{\lambda(r,t)} (dr^2 + r^2 d\vartheta^2 + r^2 \sin^2 \vartheta d\varphi^2) + e^{\nu(r,t)} dt^2. \quad (1)$$

In den Feldgleichungen, die im geometrischen Maßsystem durchwegs geschrieben werden,

$$R_{\omega}^{\sigma} - \frac{1}{2} R \delta_{\omega}^{\sigma} = - 8\pi T_{\omega}^{\sigma} \quad (2)$$

¹ DEHNEN, H., H. HÖNL u. K. WESTPFAHL: Ann. Physik **6**, 370 (1960).

² PACHNER, J.: Acta Physic. Polon. **19**, 663 (1960); — Ann. Physik **8**, 60 (1961).

³ SOERGEL-FABRICIUS, CH.: Z. Physik **159**, 541 (1960); **161**, 392 (1961).

sind die Komponenten des Materietensors mit folgenden Formeln gegeben⁴

$$T_{\omega}^{\sigma} = \frac{\delta_{\omega}^{\sigma}}{6\pi^2 G^2} \frac{dM}{dG}, \quad (\omega \neq 4), \quad T_4^4 = \frac{\delta_4^4}{2\pi^2 G^3} M, \quad (3)$$

wobei M die Gesamtmasse der Welt bedeutet, die im allgemeinen vom Krümmungsradius des Weltraumes $G(t)$ abhängen kann.

Wir suchen solche Lösung der Feldgleichungen (2), die im räumlich homogenen und isotropen Feld eine singuläre Stelle aufweist. Das von diesem singulären Punkt genügend entfernte Feld (d.h. außerhalb des durch den singulären Punkt dargestellten Körpers) können wir mit Hilfe der sukzessiven Approximationen berechnen. Die beiden unbekannten Funktionen $\lambda(r, t)$, $\nu(r, t)$ bezeichnen wir in der nullten Approximation (das ungestörte homogene und isotrope Feld) mit $\overset{\circ}{\lambda}$, $\overset{\circ}{\nu}$. Auf diese überlagert sich das durch die Singularität hervorgerufene Feld, das in der ersten Approximation mit $\bar{\lambda}$, $\bar{\nu}$ beschrieben wird. Da man sich mit genügender Genauigkeit auf die erste Approximation beschränken kann, so dürfen wir schreiben

$$\left. \begin{aligned} \lambda(r, t) &= \overset{\circ}{\lambda}(r, t) + \bar{\lambda}(r, t) = \overset{\circ}{\lambda}_1(r) + \overset{\circ}{\lambda}_2(t) + \bar{\lambda}(r, t), \\ \nu(r, t) &= \bar{\nu}(r, t). \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

Setzen wir diese Beziehung in die Feldgleichungen ein, die für die Metrik (1) von TOLMAN⁵ abgeleitet wurden, erhalten wir in der nullten Approximation für die Indizes $\omega = \sigma = 1$

$$e^{-\overset{\circ}{\lambda}_1 - \overset{\circ}{\lambda}_2} \left(\frac{1}{4} \overset{\circ}{\lambda}_1'^2 + \frac{1}{r} \overset{\circ}{\lambda}_1' \right) - \left(\overset{\circ}{\lambda}_2'' + \frac{3}{4} \overset{\circ}{\lambda}_2'^2 \right) = -8\pi T_1^1, \quad (5)$$

für die Indizes $\omega = \sigma = j = 2, 3$

$$e^{-\overset{\circ}{\lambda}_1 - \overset{\circ}{\lambda}_2} \left(\frac{1}{2} \overset{\circ}{\lambda}_1'' + \frac{1}{2r} \overset{\circ}{\lambda}_1' \right) - \left(\overset{\circ}{\lambda}_2'' + \frac{3}{4} \overset{\circ}{\lambda}_2'^2 \right) = -8\pi T_j^j, \quad (6)$$

und für die Indizes $\omega = \sigma = 4$

$$e^{-\overset{\circ}{\lambda}_1 - \overset{\circ}{\lambda}_2} \left(\overset{\circ}{\lambda}_1'' + \frac{1}{4} \overset{\circ}{\lambda}_1'^2 + \frac{2}{r} \overset{\circ}{\lambda}_1' \right) - \frac{3}{4} \overset{\circ}{\lambda}_2'^2 = -8\pi T_4^4. \quad (7)$$

In der ersten Approximation finden wir folgende Feldgleichungen für die Indizes $\omega = \sigma = 1$

$$\left. \begin{aligned} e^{-\overset{\circ}{\lambda}_1 - \overset{\circ}{\lambda}_2} \left(\frac{1}{2} \overset{\circ}{\lambda}_1' + \frac{1}{r} \right) (\bar{\lambda}' + \bar{\nu}') - \left(\overset{\circ}{\lambda}_2'' + \frac{3}{4} \overset{\circ}{\lambda}_2'^2 \right) (\bar{\lambda} - \bar{\nu}) - \\ - \left[\bar{\lambda}'' + \frac{1}{2} \overset{\circ}{\lambda}_2' (3\overset{\circ}{\lambda} - \overset{\circ}{\nu}) \right] + 8\pi T_1^1 \bar{\lambda} = 0, \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

⁴ Siehe Gln. (5.7a, b) in der Arbeit J. PACHNER: Ann. Physik **8**, 60 (1961).

⁵ TOLMAN, R.C.: Relativity, Thermodynamics, and Cosmology, Oxford 1934 Gln. (98.4) und (98.6).

für die Indizes $\omega = \sigma = j = 2, 3$

$$e^{-\overset{\circ}{\lambda}_1 - \overset{\circ}{\lambda}_2} \left[\frac{1}{2} (\bar{\lambda}'' + \bar{v}'') + \frac{1}{2r} (\lambda' + \bar{v}') \right] - \left(\overset{\circ}{\lambda}_2 + \frac{3}{4} \overset{\circ}{\lambda}_2^2 \right) (\bar{\lambda} - \bar{v}) - \left\{ \begin{array}{l} - \left[\overset{\circ}{\lambda} + \frac{1}{2} \overset{\circ}{\lambda}_2 (3 \overset{\circ}{\lambda} - \bar{v}) \right] + 8\pi T_j^j \bar{\lambda} = 0, \end{array} \right. \quad (9)$$

für die Indizes $\omega = \sigma = 4$

$$e^{-\overset{\circ}{\lambda}_1 - \overset{\circ}{\lambda}_2} \left[\bar{\lambda}'' + \left(\frac{1}{2} \overset{\circ}{\lambda}_1' + \frac{2}{r} \right) \bar{\lambda}' \right] - \frac{3}{4} \overset{\circ}{\lambda}_2^2 (\bar{\lambda} - \bar{v}) - \frac{3}{2} \overset{\circ}{\lambda}_2 \dot{\lambda} + 8\pi T_4^4 \bar{\lambda} = 0, \quad (10)$$

und für die Indizes $\omega = 1, 4; \sigma = 4, 1$

$$\dot{\lambda}' - \frac{1}{2} \overset{\circ}{\lambda}_2 \bar{v}' = 0. \quad (11)$$

Die partiellen Ableitungen nach r sind mit Strichen, die nach t mit Punkten bezeichnet.

Aus der Bedingung der räumlichen Isotropie folgt

$$\overset{\circ}{\lambda}_1(r) = -2 \ln \left(1 + \frac{r^2}{4G_0^2} \right), \quad (12)$$

wobei G_0 eine konstante Raumkrümmung bezeichnet, die im endlichen Kosmos mit seinem maximalen Krümmungsradius identisch sei. Weiter führen wir die Substitution

$$\overset{\circ}{\lambda}_2(t) = 2 \ln \frac{G(t)}{G_0} \quad (13)$$

ein. Die Feldgleichungen der nullten Approximation lauten nun für die Indizes $\omega = \sigma = i = 1, 2, 3$

$$2 \frac{\ddot{G}}{G} + \left(\frac{\dot{G}}{G} \right)^2 + \left(\frac{1}{G} \right)^2 = 8\pi T_i^i \quad (14)$$

und für die Indizes $\omega = \sigma = 4$

$$\left(\frac{\dot{G}}{G} \right)^2 + \left(\frac{1}{G} \right)^2 = \frac{8\pi}{3} T_4^4. \quad (15)$$

Wir haben hier zwei Differentialgleichungen für eine unbekannte Funktion $G(t)$, die aber infolge der BIANCHIS Identität kompatibel sind⁴. Die verschiedenen Typen des expandierenden Kosmos unterscheiden sich nur durch die Funktion $G(t)$, die mit dem Materietensor festgelegt ist. Eine nähere Kenntnis der Funktion $G(t)$ ist für weitere Berechnung nicht nötig.

Bei der Lösung der Feldgleichungen der ersten Approximation subtrahieren wir zuerst Gl. (8) von (9). Es ergibt sich mit Rücksicht auf Gl. (3)

$$(\bar{\lambda}'' + \bar{\nu}'') - \left(\dot{\lambda}'_1 + \frac{1}{r} \right) (\bar{\lambda}' + \bar{\nu}') = 0. \quad (16)$$

Diese Beziehung vertritt die Feldgleichung (9).

Nun integrieren wir die Gl. (11) nach r :

$$\dot{\bar{\lambda}} = \frac{1}{2} \dot{\lambda}_2 \bar{\nu}. \quad (17)$$

Die additive Funktion von t haben wir gleich Null gesetzt, da sie für unser Problem physikalisch unzutreffend ist.

Mit Hilfe der Gl. (17) finden wir

$$\ddot{\bar{\lambda}} + \frac{1}{2} \dot{\lambda}_2 (3 \dot{\bar{\lambda}} - \dot{\bar{\nu}}) = \left(\frac{1}{2} \ddot{\lambda}_2 + \frac{3}{4} \dot{\lambda}_2^2 \right) \bar{\nu}.$$

Wir berechnen weiter mittels der Gln. (12) und (13) den Ausdruck für $\frac{3}{4} \dot{\lambda}_2^2$ aus Gl. (7) und dann $\ddot{\bar{\lambda}}$ aus (5). Nach einigen Umformungen erhalten wir

$$\ddot{\bar{\lambda}} + \frac{3}{4} \dot{\lambda}_2^2 = -\frac{1}{G^2} + 8\pi T_i^i,$$

$$\frac{1}{2} \ddot{\lambda}_2 + \frac{3}{4} \dot{\lambda}_2^2 = -\frac{2}{G^2} + 4\pi (T_i^i + T_4^4).$$

Auf diese Weise nehmen die Feldgleichungen (8) und (10) folgende Form an:

$$\left. \begin{aligned} & \left(1 + \frac{r^2}{4G_0^2} \right)^2 \left(\frac{1}{2} \dot{\lambda}'_1 + \frac{1}{r} \right) (\bar{\lambda}' + \bar{\nu}') + \frac{1}{G_0^2} (\bar{\lambda} + \bar{\nu}) + \\ & + 4\pi (T_1^1 - T_4^4) \bar{\nu} \frac{G^2}{G_0^2} = 0. \end{aligned} \right\} \quad (18)$$

$$\left(1 + \frac{r^2}{4G_0^2} \right)^2 \left[\bar{\lambda}'' + \left(\frac{1}{2} \dot{\lambda}'_1 + \frac{2}{r} \right) \bar{\lambda}' \right] + \frac{3}{G_0^2} \bar{\lambda} = 0. \quad (19)$$

Solange $r \ll G_0$ und $G(t)$ von derselben Größenordnung wie G_0 ist, dürfen wir in allen Feldgleichungen der ersten Approximation die Glieder von der Größenordnung G_0^{-2} vernachlässigen. Da $\dot{\lambda}'_1$ und T_w^σ dann von derselben Größenordnung sind, vereinfachen sich die Feldgleichungen der ersten Approximation in dieser Annäherung wie folgt:

$$(\bar{\lambda}' + \bar{\nu}') = 0, \quad (18^*)$$

$$(\bar{\lambda}'' + \bar{\nu}'') - \frac{1}{r} (\bar{\lambda}' + \bar{\nu}') = 0, \quad (16^*)$$

$$\bar{\lambda}'' + \frac{2}{r} \bar{\lambda}' = 0, \quad (19^*)$$

$$\dot{\bar{\lambda}} - \frac{1}{2} \dot{\lambda}_2 \bar{v} = 0. \quad (17^*)$$

Es macht nun keine Schwierigkeiten mehr, diese Feldgleichungen zu integrieren. Gl. (19*) bestimmt die Abhängigkeit der Funktion $\bar{\lambda}$ von der Koordinate r . Die Beziehung zwischen $\bar{\lambda}$ und \bar{v} gibt die Gl. (18*) an. Gl. (16*) ist dann zugleich erfüllt. Schließlich berechnen wir aus Gl. (17*) die Abhängigkeit beider Funktionen $\bar{\lambda}$ und \bar{v} von der Koordinate t . Die additive Funktion von t , die sich aus der Integration der Gl. (19*) sowie (18*) ergibt, haben wir in beiden Fällen als physikalisch unzutreffend gleich Null gesetzt. Das Ergebnis unserer Berechnung sind daher die Funktionen

$$\bar{\lambda}(r, t) = -\bar{v}(r, t) = \frac{K}{r} \frac{G_0}{G(t)}. \quad (20)$$

Sie hängen von der Art der Expansion des Kosmos nur durch die Funktion $G(t)$ ab.

Die Integrationskonstante K bestimmen wir durch Vergleichen der aus der Metrik (1), in die wir nach Gl. (4) die Funktionen (12), (13) und (20) einsetzen, sich ergebenden Eigenzeit dt_0 und der Eigenentfernung $d\sigma_0$ (wobei $d\vartheta = d\varphi = 0$)

$$dt_0^2 = \left(1 - \frac{K}{r} \frac{G_0}{G}\right) dt^2,$$

$$d\sigma_0^2 = \left(\frac{G(t)/G_0}{1 + r^2/4G_0^2}\right)^2 \left(1 + \frac{K}{r} \frac{G_0}{G}\right) dr^2,$$

mit den Werten, die aus der bekannten Metrik eines isolierten Massenpunktes im unendlichen leeren Raum folgen:

$$dt_0^2 = \left(\frac{1 - m_0/2\tilde{r}}{1 + m_0/2\tilde{r}}\right)^2 dt^2,$$

$$d\sigma_0^2 = (1 + m_0/2\tilde{r})^4 d\tilde{r}^2.$$

Bei Vernachlässigung von r gegen G_0 und der höheren Potenzen von (m_0/\tilde{r}) finden wir

$$K = 2m_0 \quad (21)$$

wobei (für $t = \text{konst.}$ — wie in der Relativitätstheorie bei der Bestimmung der Eigenentfernung gemacht wird)

$$\sigma_0 \cong \tilde{r} = \frac{G(t)}{G_0} r. \quad (22)$$

Die gesuchte Metrik (1) lautet in ihrer endgültigen Form

$$ds^2 = - \left(\frac{G(t)/G_0}{1 + r^2/4G_0^2} \right)^2 (1 - 2\Psi) (dr^2 + r^2 d\vartheta^2 + r^2 \sin^2 \vartheta d\varphi^2) + (1 + 2\Psi) dt^2 \quad (23)$$

mit

$$\Psi = - \frac{m_0}{r} \frac{G_0}{G(t)} = - \frac{m_0}{\tilde{r}} \cong - \frac{m_0}{\sigma_0}. \quad (24)$$

Die Größe m_0 ist als konstante Masse des singularen Punktes und die Funktion Ψ als das in geometrischen Einheiten gemessene Newtonsche Gravitationspotential zu interpretieren.

Diskussion

Das Ergebnis unserer Berechnung, das mit der Metrik (23) samt (24) erklärt ist, zeugt, daß das Gravitationsfeld eines Massenpunktes in der oben angegebenen Annäherung auch in gekrümmtem und expandierendem Weltraum mit dem Newtonschen Gravitationspotential beschrieben wird. Das Gravitationspotential ist umgekehrt proportional zur Eigenentfernung σ_0 , d. h. das lokale Gravitationsfeld wird durch die Expansion des Weltraumes nicht beeinflußt.

Es gibt zwei Möglichkeiten, wie die Formel (24) zu deuten ist. Nach der ersten hält man die Masse des singularen Punktes für konstant, d. h. unbeeinflußt durch die Expansion. Der Kosmos entspricht dann dem Friedmanschen Modell, dessen Gesamtmasse dauernd ungeändert bleibt.

Es ist aber mit den Feldgleichungen der allgemeinen Relativitätstheorie auch die Annahme von der Relativität der Trägheit wohl verträglich, die mit der Beziehung

$$m(G) = m_0 \left(\frac{G_0}{G} \right)^n \quad (25)$$

erklärt sei. Es bezeichnet hier m_0 die Masse des singularen Punktes bei der Raumkrümmung G_0 und n eine Konstante. Gl. (24) nimmt jetzt die Form

$$\Psi = - \frac{m(G)}{r} \left(\frac{G(t)}{G_0} \right)^{n-1} \cong - \frac{m_0}{\sigma_0} \quad (26)$$

ein, die für $n=1$ besonders einfach wird.

Da die Gesamtmasse der Welt sich aus hoher Anzahl von Körpern zusammensetzt, deren Massen, für jeden Körper getrennt, sich dann ebenso nach Gl. (25) ändern, so muß die Gesamtmasse der Welt M auch von der Raumkrümmung in derselben Weise abhängen. Die Komponenten des Materietensors T_{ω}^{σ} , die mit Gl. (3) gegeben sind, nehmen nun folgende Werte ein

$$T_{\omega}^{\sigma} = - \frac{n}{3} \varrho_0 \left(\frac{G_0}{G} \right)^{n+3} \delta_{\omega}^{\sigma} (\omega \neq 4); \quad T_4^4 = \varrho_0 \left(\frac{G_0}{G} \right)^{n+3} \delta_4^4, \quad (27)$$

wobei ϱ_0 die mittlere Massendichte des Weltraumes bei der Krümmung G_0 bezeichnet. Für $n=0$ erhalten wir die Friedmansche Welt, für $n>0$ sinkt die Trägheit der Massenkörper bei fortschreitender Expansion (im Raum von negativer Krümmung in den spätesten Stadien der Expansion bis auf Null), für $n<0$ entsteht dagegen bei der Expansion die gravitierende Masse vom Nichts, was physikalisch kaum gerechtfertigt werden kann. Ein Beispiel eines solchen Modells stellt die de Sittersche Welt² mit $n=-3$ dar, in der die mittlere Massendichte im Weltraum infolge der kontinuierlichen Erschaffung der gravitierenden Massen bei der Expansion konstant bleibt.

Ob die Relativität der Trägheit tatsächlich existiert oder nicht, kann man selbstverständlich nicht auf Grund der vorliegenden Arbeit entscheiden, aber nach der Meinung des Verfassers soll man sie nicht a priori ablehnen. Auf die Einwendung, daß im Schwarzschildschen Feld die Änderungen in der Masse eines Probeteilchens nur gering sind, kann man antworten, daß dieses Feld nicht den wirklichen physikalischen Verhältnissen entspricht. Sobald sich nämlich im Raum eine größere Menge von Körpern befindet, verteilen sie sich dem Entropiesatz der statistischen Thermodynamik gemäß annähernd gleichmäßig im Raum, was mit einer Expansion (bzw. Kontraktion) des annähernd und isotrop gekrümmten Weltraumes begleitet und gefolgt wird. Die grundlegenden Betrachtungen über die Relativität der Trägheit sollen sich deshalb stets auf eine homogen und isotrop gekrümmte Welt beschränken.

Wie es sich aus Gln. (25), (27) und (14), (15) ergibt, bestimmt die Abhängigkeit der Masse vom Raumkrümmungsradius die Form der Expansion des Weltraumes, die mit der Funktion $G(t)$ beschrieben ist. Dies eröffnet uns den Weg zur Klärung der Frage über die Relativität der Trägheit.

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Bonn

Isotopentrennung mit dem elektrischen Massenfilter

Von

F. v. BUSCH und W. PAUL

(Eingegangen am 4. Juli 1961)

Es wird über Versuche zur Trennung wägbarer Mengen von Magnesium berichtet. Bei Anreicherung eines der beiden selteneren Isotope (natürliche Häufigkeiten: Mg^{24} – 79%, Mg^{25} – 10%, Mg^{26} – 11%) konnten in etwa zehnstündigem Trenngang bis zu einigen hundert Mikrogramm des jeweils aufgefangenen Isotops gesammelt werden. Mg^{26} wurde auf 84%, Mg^{25} in einem anderen Experiment auf 69% angereichert. Verschiedene Fehlerquellen und Wege zur Verbesserung der Apparatur werden diskutiert.

In einer früheren Arbeit von PAUL, REINHARD und VON ZAHN¹ ist das elektrische Massenfilter eingehend auf sein Verhalten als Massenspektrometer und als Isotopentrenner untersucht worden. Dabei zeigte sich, daß es in einer Abwandlung des ursprünglichen Filterprinzips^{2,3} geeignet ist, relativ hohe Ionenströme zu fokussieren und Partikeln bestimmter Massen aus dem Strahl zu eliminieren. Es soll nun über einige Trennexperimente mit Magnesium berichtet werden, die im Anschluß an die genannte Arbeit an derselben Versuchsapparatur wie diese durchgeführt wurden. In der unter ¹ zitierten Veröffentlichung findet man neben einer Beschreibung des Trenners eine ausführliche Darstellung der Theorie des Massenfilters, auf die wir uns einschließlich der dort benutzten Bezeichnungen beziehen.

Apparatur

Das Vierpolfeld hat folgende Daten: Länge 3 m, Radius $r_0 = 1,5$ cm, Frequenz $\nu = 2,6$ MHz. Als Ionenquelle dient ein magnetisch stabilisierter Niedervoltbogen⁴. Die Ionen werden aus dem auf Beschleunigungspotential liegenden Entladungsraum herausgezogen und durch eine kreisförmige Blende von 2 cm Durchmesser unmittelbar in das Vierpolfeld eingeschossen. Als Auffänger dient ein hinter dem Elektrodensystem angebrachtes Kupferblech. Der Auffängerstrom wird nicht auf Sekundärelektronen korrigiert. Ihr Anteil beträgt etwa 20%. Die

¹ PAUL, W., H.P. REINHARD u. U. VON ZAHN: Z. Physik **152**, 143 (1958).

² PAUL, W., u. H. STEINWEDEL: Z. Naturforsch. **8a**, 448 (1953).

³ PAUL, W., u. M. RAETHER: Z. Physik **140**, 262 (1955).

⁴ PAULY, H.: Diplomarbeit Bonn 1955 (unveröffentlicht).

Transmission des Vierpolfeldes liegt in der Größenordnung 50 %, wenn man den Arbeitspunkt in die Mitte des Stabilitätsbereichs ($a \approx 0,08$; $q \approx 0,6$) legt¹.

Das Hochfrequenzsystem wurde gegenüber dem früheren Aufbau verbessert. Das Führungsfeld wird von einem vierstufigen Sender erzeugt. Ein elektronengekoppelter Oszillator mit Frequenzverdopplung gewährleistet ausreichende Frequenzkonstanz. Die Endstufe arbeitet in Gegentakt-C-Schaltung und kann bis zu 1 kW HF-Leistung abgeben. Die Schwingspannung am Vierpolsystem beträgt maximal 7,5 kV_{ss}. Eine Amplitudenstabilisierung sorgt für die bei langfristigen Trennversuchen nötige Konstanz dieses Parameters. Die Schaltung stabilisiert die Hochfrequenzspannung V auf $\pm 2\%$ Abweichung vom Sollwert. Das Verhältnis des zur Regelung verwendeten, induktiv ausgekoppelten HF-Signals und der gesamten Schwingspannung hängt etwas von der Abstimmung des Endkreises ab. Letztere zeigt infolge Erwärmung der Impedanzen langfristige Schwankungen, die sich über die Regelschaltung auf den Parameter q übertragen. Bei längerem Betrieb mit festem Arbeitspunkt müssen die Spannungen U und V am Vierpolsystem oder die Frequenzen der den Filtereffekt bewirkenden Störfelder deshalb von Zeit zu Zeit kontrolliert werden.

Die am Elektrodensystem liegende Gleichspannung U wird nicht wie bei früheren Versuchen¹ durch Gleichrichtung eines induktiv aus dem Endkreis ausgekoppelten Bruchteils von V erzeugt, sondern einem stabilisierten Netzgerät entnommen. Eine von V unabhängige Stabilisierung der Gleichspannung U erschien bei langfristigen Experimenten mit festem Arbeitspunkt, insbesondere Trennversuchen, günstiger. Das Vierpolsystem muß für die Gleichspannung möglichst niederohmig geerdet sein, da die Ladung der auf die Stäbe treffenden Ionen beim Abfließen eine Potentialdifferenz erzeugt. Diese verfälscht die an den x - bzw. den y -Elektroden liegenden Gleichspannungen in unterschiedlichem Maße, weil der Strom der aus dem Strahl eliminierten Partikeln sich nicht gleichmäßig auf die Elektrodenpaare verteilt, so daß sich der Arbeitspunkt verschiebt. Schwankungen der Ionenemission oder der Einschußbedingungen ändern den auf die Stäbe fließenden Strom, übertragen sich dadurch auf U und verlangen eine getrennte Stabilisierung dieses Parameters.

Ein bestimmtes Isotop läßt sich dadurch aus dem Strahl ausscheiden, daß die Schwingungsamplitude der Ionen dieser Masse mit Hilfe einer periodischen äußeren Störspannung, die in Resonanz mit der Grundfrequenz $\nu_0 = \frac{\beta}{2} \nu$ der Bewegung im Vierpolfeld liegt, aufgeschaukelt wird. Zur Anreicherung eines der drei natürlichen Isotope des Magnesiums sind also zwei Störspannungen notwendig. Sie werden von zwei

in Amplitude und Frequenz regelbaren Oszillatoren erzeugt, deren Ausgangssignale summiert, verstärkt und über ein Bandfilter zwischen die x -Elektroden symmetrisch zu den beiden anderen gelegt werden, so daß ein näherungsweise homogenes Störfeld entsteht.

Massenspektrometrische Kontrolle des Auffängerstroms

Der Emissionsstrom der Ionenquelle und damit der Durchsatz des Filters steigt mit der Beschleunigungsspannung stark an, so daß es vorteilhaft erschien, auf Kosten des Auflösungsvermögens die Einschußspannung relativ hoch zu wählen. Die geringe Auflösung erschwert jedoch das Aufsuchen der optimalen Störparameter und macht eine Kontrolle der Trennung wünschenswert. Hierzu wurde bei früheren Untersuchungen ein Vierpolmassenspektrometer von 50 cm Länge benutzt, in das ein Teil des Auffängerstroms eingeschossen wurde^{1,5}. Die Eintrittsöffnung befand sich dabei im Zentrum des Auffängers. Messungen mit Natrium, das nur ein natürliches Isotop besitzt, zeigten, daß mit wachsender Störspannung der Strom im Spektrometer bereits verschwand, wenn im Trennfilter noch ein beträchtlicher Teil der ohne Störung registrierten Intensität gemessen wurde. Dies liegt daran, daß eine schwache Störung den Ionenstrom zunächst auf die Randzone des Auffängers abdrängt, so daß die Stromdichte in dessen Zentrum zuerst verschwindet¹.

Eine Verbesserung ergab sich daraus, daß die Eintrittsöffnung des Spektrometers mitsamt dem Elektrodensystem um 10 mm seitlich gegen die Achse des Trennfilters in Richtung des Störfeldes verschoben wurde. Mit wachsender Störspannung steigt der in das kleine Massenfilter eingeschossene Strom anfangs an, sinkt dann nach Erreichen eines Maximums ab und verschwindet etwa gleichzeitig mit dem Gesamtstrom. Messungen ergaben, daß an keiner Stelle des Auffängers Proportionalität zwischen der lokalen Stromdichte und dem Totalstrom in Abhängigkeit von der Störspannung besteht.

Es war nunmehr möglich, mit Hilfe des kleinen Filters die optimalen Störspannungen und -frequenzen für das Aufschaukeln bestimmter Isotope einigermaßen genau festzulegen. Der Zusammenhang der Auffängerströme in beiden Filtern bleibt jedoch kompliziert. So zeigt der Strom auf einer Masse im Analysierspektrometer, gemessen als Funktion der Störfrequenz im Trennfilter bei konstanter Amplitude, mehrere Minima verschiedener Tiefe. Die erzwungene Schwingung der Ionen unter dem Einfluß der Störung führt zu einer Modulation des Strahldurchmessers längs der Achse des Trenners. Der Strahl zeigt eine Art

⁵ YOUSSEF, A.: Diplomarbeit Bonn 1957 (unveröffentlicht).

„stehender Wellen“, deren Länge von der Störfrequenz und der Ionen- geschwindigkeit abhängt⁶. Ändert man kontinuierlich die Frequenz, so verteilt sich der Strom abwechselnd auf eine kleinere oder größere Fläche des Auffängers. Damit wechselt auch der in das Spektrometer eingeschossene Prozentsatz⁵. Das führt dazu, daß die Resonanzfrequenz eines Isotops, die aus der Lage des tiefsten Minimums in dem auf der entsprechenden Masse registrierten Spektrometerstrom bestimmt wird, nicht sehr genau festzulegen ist. Dadurch wird die Brauchbarkeit dieses Verfahrens zur Bestimmung der optimalen Störparameter eingeschränkt, besonders bei Anwendung mehrerer Störfrequenzen. Hier liegt ein noch nicht befriedigend gelöstes Problem.

Trennung wägbarer Substanzmengen

Die Trennfähigkeit des Massenfilters wurde am Beispiel der drei Mg-Isotope 24, 25 und 26 (natürliche Häufigkeiten 79%, 10% bzw. 11%) erprobt. Die Anreicherung eines einzelnen Isotops erfordert zwei überlagerte Störfelder, deren Amplituden und Frequenzen mit Hilfe des Analyserspektrometers bestimmt und von Zeit zu Zeit nachjustiert wurden.

Als Auffänger wurde bei diesen Experimenten eine 0,1 mm dicke Folie aus Reinaluminium verwendet, die zur Kühlung mit Schrauben auf einem Kupferblech befestigt war. Der von der getrennten Substanz gebildete Niederschlag konzentrierte sich größtenteils auf eine rhombische Fläche, die mit etwa 2 cm² wesentlich kleiner als der Feldquerschnitt war. Als typisches Beispiel für die Werte der Apparaturparameter sei die bei dem zweiten Trennexperiment der untenstehenden Tabelle gewählte Einstellung angeführt: $U = 175$ V, $V = 2,06$ kV, Beschleunigungsspannung $U_B = 1,6$ kV, Störfrequenzen $\nu'_1 = 832$ kHz, $\nu'_2 = 883$ kHz mit den Spannungen $V'_1 = 85$ V_s bzw. $V'_2 = 110$ V_s. Der Druck im Feldraum lag bei $2 \cdot 10^{-5}$ bis $4 \cdot 10^{-5}$ Torr.

Die folgende Tabelle gibt einige weitere Daten zu den einzelnen Trennversuchen wieder. i_0 und i_{st} bezeichnen den mittleren Auffängerstrom ohne bzw. mit Störung. M_r und M_w bedeuten die aus i_{st} berechnete bzw. die durch Wägung der Auffängerfolie bestimmte gesammelte Substanzmenge. Die drei letzten Spalten enthalten die spektroskopisch ermittelten Häufigkeiten der Mg-Isotope im Niederschlag. Dabei ist der Anteil der Masse, die angereichert werden sollte, fett gedruckt.

Der Ionenstrom war bei unseren Versuchen durch die Emission der Quelle beschränkt. Für das Massensfilter selbst liegt die Grenze dort, wo die Raumladungskräfte die Fokussierung durch das Vierpolfeld auf-

⁶ PAUL, W., u. H.P. REINHARD: Forschungsberichte des Wirtschafts- und Verkehrsministeriums Nordrhein-Westfalen Nr. 450, 1958.

Tabelle

Nr.	i_0 [μ A]	i_{st} [μ A]	Versuchsdauer [h]	M_r [μ g]	M_w [μ g]	M_w/M_r [%]	Eliminierte Massen	Mg ²⁴ [%]	Mg ²⁵ [%]	Mg ²⁶ [%]
1	600	92	10,5	900	395	44	24, (26)	3	32	65
2	840	83	9	730	265	52	24, 25	3	13	84
3	720	50	11	515	>140	>27	24, 26	9	50	41
4	200	10	6	55			24, 26	26	69	5
5	650	60	3,5	200			24, 25	14	14	72

heben*. Versuche zur massenspektrometrischen Analyse der Trennproben schlugen fehl, da die vorhandenen Substanzmengen hierfür nicht ausreichten. Die Häufigkeitsverteilung der Isotope wurde deshalb optisch aus der Hyperfeinstruktur der Mg-Linie $\lambda = 5528 \text{ \AA}$ mit einem registrierenden Fabry-Perot-Spektrometer bestimmt. Dazu wurde ein Stück der Auffängerfolie ausgeschnitten und in eine Schüler-Hohlkathode als Lichtquelle gebracht. Der Fehler in den angegebenen Häufigkeiten beträgt etwa $\pm 5\%$ der Gesamtintensität. Der Anteil von Mg²⁴ in den beiden ersten Proben ist sicher größer als 1%. Die Analyse wurde im I. Physikalischen Institut der Universität Heidelberg ausgeführt.

Vor allem die ersten drei Versuche zeigen am Beispiel des im natürlichen Vorkommen dominierenden Isotops Mg²⁴, daß eine Masse weitgehend aus dem Strahl eliminiert werden kann. In der dritten Probe ließ Mg²⁵ sich gegenüber Mg²⁴ etwa um den Faktor 45 anreichern, während Mg²⁶ in Probe 2 gegenüber dem häufigsten Isotop sogar um den Faktor 200 angereichert wurde. Der große Anteil von Mg²⁶ in der ersten Probe geht auf fehlerhafte Einstellung der betreffenden Störfrequenz zurück. Bei der dritten Probe ist er daraus zu erklären, daß durch die starke zur Absorption des häufigsten Isotops dienende Störung auch ein Teil der Masse 25 eliminiert wird, so daß sich das Häufigkeitsverhältnis zugunsten von Mg²⁶ verschiebt. Die Masse 26 läßt sich leichter anreichern als das Isotop Mg²⁵, da die am engsten benachbarte Störung wegen der geringen relativen Häufigkeit von Mg²⁵ nicht so intensiv zu sein braucht (Probe 2).

Der Wert des Verhältnisses M_w/M_r zeigt, daß ein beträchtlicher Prozentsatz der gesammelten Ionen den Auffänger wieder verläßt, weil der bereits vorhandene Niederschlag durch die später auftreffenden Partikeln zum Teil zerstäubt wird. Dabei ist allerdings zu berücksichtigen, daß der wahre Ionenstrom wegen der Auslösung von Sekundärelektronen

* In einer früheren Arbeit¹ ist eine Kompensation der Raumladung durch gleichzeitige Stabilisierung von Elektronen mit Hilfe eines axialen Magnetfeldes vorgeschlagen worden. Eine nähere Betrachtung zeigt jedoch, daß sich Elektronen bei vernünftig angenommenen Größenordnungen der verschiedenen Feldparameter auf diese Weise nicht fokussieren lassen.

etwas kleiner ist als der gemessene. Bei geeigneter Form des Auffängers ließe sich der Anteil der wieder verlorenen Ionen am gesamten Strom sicher noch herabsetzen, zumal man die Teilchen abbremsten kann, da die hierbei in magnetischen Trennern auftretenden Fokussierungsschwierigkeiten⁷ angesichts der großen Fläche des Auffängers nicht zu erwarten sind.

Ebenso sind die Isotope zweifellos noch stärker anzureichern, wenn die langfristige Stabilität der Feldparameter verbessert wird. Ein wesentlicher Fortschritt in dieser Richtung sollte zu erzielen sein, wenn das Auflösungsvermögen des Trennfeldes erhöht wird, indem man die Stör-Amplitude herabsetzt und die Flugzeit der Ionen vergrößert. Eine höhere Auflösung ergibt sich auch, wenn man durch geeignete Eintrittsblenden die in größerer Entfernung von der Achse des Filters eingeschossenen Ionen unterdrückt⁶, die schon bei beträchtlichem Frequenzabstand von der Resonanzstelle eliminiert werden. Um nicht Intensität zu verlieren, muß man dann allerdings die Einschubbedingungen verbessern.

Es sei noch die Möglichkeit erwähnt, die Resonanzstörung durch ein zusätzliches Vierpolfeld zu erzeugen. Man kann diesen Fall mathematisch ähnlich behandeln wie den Einfluß von Fehlern im Feldindex auf die Betatronsoschwingungen im Synchrotron mit alternierendem Feldgradienten⁸. Dabei zeigt sich, daß der Stabilitätsbereich von Zonen endlicher, der Störspannung proportionaler Breite durchzogen wird, innerhalb deren der charakteristische Exponent μ einen von Null verschiedenen Realteil hat und die Amplituden exponentiell ansteigen. Die Mittellinie eines solchen Streifens ist die durch $\nu'/\nu = |n + \beta|$ bestimmte Iso- β -Kurve. Hier bedeutet ν' die Frequenz des Störfeldes und n eine ganze Zahl. Auf dieser Iso- β -Linie ist der Realteil des charakteristischen Exponenten am größten innerhalb des Streifens und der Störspannung proportional. Da jede Frequenz $\nu' \neq k\nu$ (k ganz) die beiden Darstellungen $\nu' = \nu \cdot |n + \beta|$ und $\nu' = \nu \cdot |-(n+1) + \beta'|$ mit $0 < \beta, \beta' < 1$ erlaubt, gibt es genau zwei solche Linien für die x -Komponente und wegen der Symmetrie der Störung zwei für die y -Komponente der Bewegung, die jeweils spiegelbildlich zur Kurve $\beta = \frac{1}{2}$ liegen.

Eine solche Quadrupolstörung erscheint bei größeren Flugzeiten der Ionen wegen des exponentiellen Anstiegs der Resonanzamplituden vorteilhafter als ein homogenes Störfeld, in dem die Amplituden linear wachsen. Das maximal erreichbare Auflösungsvermögen nimmt dann mit der Flugzeit stärker als linear zu.

⁷ NORMAND, C.E., L.O. LOVE and W.A. BELL jr.: In M.L. SMITH, Electromagnetically enriched isotopes and mass spectrometry. Proceedings of the Harwell Conference Sept. 1955, London 1956, pg. 47 f.

⁸ LÜDERS, G.: Suppl. Nuovo Cim. **2**, 1075 (1955).

Die vorliegenden Messungen sollten die Eignung des Massenfilters zur Isotopentrennung zeigen. Sie wurden sicher nicht unter optimalen Bedingungen durchgeführt. Es ließ sich jedoch zeigen, daß man ohne großen Aufwand beträchtliche Ionenströme mit guter Transmission fokussieren und trennen kann, wobei Anreicherungs faktoren in der Größenordnung 100 erzielt wurden. Das Auflösungsvermögen der vorhandenen Apparatur war relativ gering, so daß sich vorerst im Vergleich zu technischen magnetischen Separatoren nur mittlere Reinheit der Isotope erreichen ließ. Die Trennschärfe kann durch andere Wahl der Feldparameter erhöht werden.

Herrn Dr. U. v. ZAHN danken wir für eine Reihe wertvoller und anregender Diskussionen. Besonderer Dank für seine Hilfsbereitschaft gebührt Herrn Dr. G. NÖLDEKE aus dem I. Physikalischen Institut der Universität Heidelberg, der die Trennproben für uns analysiert hat.

Aus dem Physikalischen Institut der Universität Bonn

Über nichtlineare Resonanzen im elektrischen Massenfilter als Folge von Feldfehlern

Von

F. v. BUSCH und W. PAUL

Mit 3 Figuren im Text

(Eingegangen am 4. Juli 1961)

Abweichungen vom idealen raumzeitlichen Verlauf des Vierpolfeldes im elektrischen Massenfilter rufen bei bestimmten Werten der Feldparameter nichtlineare Resonanzen der Ionenbewegung hervor, die analog den Stoppbändern bei Kreisbeschleunigern mit alternierendem Feldgradienten entstehen. Genügend starke Störungen führen zu einer Abnahme der Intensität des stabilisierten Ionenstrahls. Verschiedene Feldfehler werden im Hinblick auf die theoretisch möglichen Resonanzen diskutiert und die Ergebnisse mit experimentellen Beobachtungen verglichen.

Im elektrischen Massenfilter¹ bewegen sich geladene Teilchen in einem hochfrequenten Feld, das von Elektroden mit im Idealfall hyperbelförmigem Querschnitt erzeugt wird. Da massive Elektroden dieser Form kaum mit der nötigen Genauigkeit hergestellt und justiert werden können, verwendet man im allgemeinen an ihrer Stelle kreiszylindrische Stäbe. Frühere Untersuchungen zeigten, daß diese Näherung das bei der theoretischen Behandlung des Bewegungsproblems angenommene Feld vollkommen hinreichend approximiert und die Trennfähigkeit des Massenfilters nicht beeinträchtigt^{2,3}. Ebenso stört das Auftreten schwacher Oberwellen zur Grundfrequenz der Hochfrequenzspannung nicht. Allenfalls verschieben sich dadurch etwas die Grenzen des Stabilitätsbereichs, die ohnehin empirisch festgelegt werden.

Sind also die geringen Abweichungen vom idealen Feldverlauf im allgemeinen nicht nachweisbar, so können sie sich doch bemerkbar machen, wenn Resonanzeffekte auftreten, bei denen die Einwirkung einer kleinen Störung zeitlich akkumuliert wird. Die Verhältnisse liegen ähnlich wie in Kreisbeschleunigern mit alternierendem Feldgradienten.

Resonanzen eines Oszillators bei nichtlinearer Störkraft

Als Modell für die Ionenbewegung betrachten wir zuerst einen in zwei Dimensionen schwingenden harmonischen Oszillator mit den Eigenfrequenzen ν_x und ν_y in kartesischen Koordinaten x , y bzw. in

¹ PAUL, W., u. H. STEINWEDEL: Z. Naturforsch. **8a**, 448 (1953).

² PAUL, W., u. M. RAETHER: Z. Physik **140**, 262 (1955).

³ PAUL, W., H. P. REINHARD u. U. VON ZAHN: Z. Physik **152**, 143 (1958).

Polarkoordinaten r, φ . Die Richtung $\varphi=0$, die x -Achse und eine Normalschwingungsrichtung des Oszillators mögen zusammenfallen. Setzen wir diesen Oszillator einem Störpotential der Form

$$\Phi_N = a_N r^N \cos N(\varphi - \varepsilon_N) \cdot \cos 2\pi \nu' t \quad (1)$$

aus, so kann Resonanz der Bewegung eintreten für $\nu' = n_1 \nu_x + n_2 \nu_y$ mit $|n_1| + |n_2| = K$. Dabei sind n_1, n_2 und K ganze Zahlen. K kann die Werte $N, N-2, N-4 \dots$ annehmen^{4,5}. Ein periodisches Multipolfeld vermag also eine große Zahl von Resonanzen zu erzeugen, die jedoch unter Umständen nicht alle angeregt werden. Die dem Oszillator im Zeitmittel zugeführte Störleistung verschwindet an jeder zweiten Resonanzstelle in erster Näherung, wenn ε_N gleich 0 oder π gesetzt werden kann (ε_N ist nur modulo $2\pi/N$ bestimmt), d. h. wenn das störende Multipolfeld so orientiert ist, daß das Störpotential als Funktion von φ bei festem r ein Extremum für $\varphi=0$ annimmt. Resonanz tritt dann nur für $n_1 = K, K-2, K-4 \dots$ ein. Beispielsweise entfällt bei Störung durch einen Quadrupolterm der Form $a_2(x^2 - y^2) \cdot \cos 2\pi \nu' t$ ($N=2$; $\varepsilon_2=0$) die Kopplung zwischen der x - und der y -Schwingung, und die Resonanzen $\nu' = \nu_x \pm \nu_y$ werden nicht angeregt⁶. Maximal können $K+1$ Summenresonanzen — definiert durch $n_1, n_2 \geq 0$ — der Ordnung K auftreten, die für $\nu_x = \nu_y$ an der Stelle $\nu' = K\nu_x$ zusammenfallen. Dort ist die Störfrequenz ein ganzzahliges Vielfache der Eigenfrequenz des Oszillators.

Im folgenden wird die Theorie des Massenfilters als bekannt vorausgesetzt. Wir verweisen auf die ausführliche Darstellung in einer früheren Arbeit³.

Für das Potential im Massenfilter machen wir den allgemeinen Ansatz

$$\Phi = \sum_N \sum_n a_N \left(\frac{r}{r_0} \right)^N \cos N(\varphi - \varepsilon_N) \cdot \left[U + V \cdot b_n \cos 2\pi n \frac{\nu}{2} (t - t_n) \right]. \quad (2)$$

Das der Mathieu-Gleichung zugrunde liegende reine Vierpolfeld, wie es vier ideale Hyperbelektroden erzeugen, wird durch den Term mit $N=n=2$ repräsentiert. Bei den folgenden Betrachtungen lassen wir nur geringe Abweichungen davon zu, d. h. wir nehmen $a_N \ll a_2, b_n \ll b_2$ an für alle $N, n \neq 2$. Die Glieder mit $N \neq 2$ und gleichzeitig $n \neq 2$ sind dann klein von mindestens zweiter Ordnung gegen das ideale Feld und können vernachlässigt werden, so daß wir nur die Summanden mit $N=2$ oder $n=2$ zu betrachten brauchen. Da der von uns verwendete Hochfrequenzgenerator mit Frequenzverdopplung in einer Vorstufe

⁴ HAGEDORN, R.: CERN 57-1, 1957.

⁵ BARBIER, M., u. A. SCHOCH: CERN 58-5, 1958.

⁶ BUSCH, F. V., u. W. PAUL: Z. Physik **164**, 581 (1961).

arbeitet, bei der die Oszillatorfrequenz nicht vollständig unterdrückt wird, berücksichtigen wir in dem Ansatz (2) auch die Frequenz $\nu/2$ und ihre ungeraden Oberwellen.

Nimmt man an, daß im idealen Vierpolfeld stabilisierte Ionen sich in erster Näherung wie zweidimensionale Oszillatoren mit den Eigenfrequenzen $\frac{\beta_x}{2}\nu$ und $\frac{\beta_y}{2}\nu$ verhalten, so rufen die Störterme in (2), die die Feldfehler repräsentieren, nach den vorstehenden Überlegungen Resonanzeffekte bei bestimmten β -Werten hervor, die sich durch einen Rückgang des Auffängerstroms im Massenfilter bemerkbar machen sollten.

Nachweis der Resonanzen

Zur experimentellen Prüfung benutzten wir den in einer vorangehenden Veröffentlichung³ beschriebenen Isotopentrenner (Felddaten: Länge 3 m, Radius $r_0 = 1,5$ cm, Frequenz $\nu = 2,6$ MHz). Die Hochfrequenzamplitude V wurde mit 50 Hz sägezahnförmig moduliert, während die Gleichspannung U konstant gehalten wurde. Der Arbeitspunkt im Stabilitätsdiagramm bewegte sich also periodisch längs einer Parallelen zur q -Achse. Die Kurven des Auffängerstroms als Funktion von q ließen sich daher bequem auf dem Oszillographenschirm beobachten. Die Messungen wurden mit Natrium durchgeführt, das nur ein natürliches Isotop besitzt.

Fig. 1 zeigt ein derartiges Oszillogramm. Mit wachsendem q nimmt der Strom ab, da die Fokussierung schlechter wird, bis der Arbeitspunkt den Stabilitätsbereich verläßt. An den Stellen $\beta = 1/3$, $\beta = 1/2$ und $\beta = 2/3$ zeigt der Strom einen deutlichen Rückgang. Da keine Gleichspannung überlagert war, stimmen die Frequenzspektren beider Koordinatenrichtungen überein. Der erwartete Effekt ist also nachweisbar. Die Lage der Minima in der β -Skala läßt sich durch Vergleich mit einer künstlich erzeugten Absorptionslinie bestimmen. Hierzu wurde eine periodische Störspannung frei wählbarer Frequenz zwischen die x -Elektroden des Vierpolsystems gelegt³. Wenn die „natürliche“ und die künstliche Absorptionsstelle annähernd zusammenfallen, wechselt die Tiefe des Minimums schwebungsartig. Mit der Störfrequenz ist dann auch β bekannt.

Diskussion der Feldfehler und der durch sie verursachten Resonanzen

a) **Abweichung vom Hyperbelquerschnitt.** Die Approximation der Hyperbelelektroden durch Kreiszylinder führt bei idealer Justierung dazu, daß als Störungsglied niedrigster Ordnung in Gl. (2) ein Zwölfpolpotential auftritt. Die von dem entsprechenden Term ($N=6$; $\epsilon_6=0$; $n=2$) erzeugten Summenresonanzen der Ordnung $K=6$ liegen

bei

$$\nu' = \nu = n_1 \frac{\beta_x}{2} \nu + (6 - n_1) \frac{\beta_y}{2} \nu \quad (n_1 = 0, 2, 4, 6)$$

und fallen folglich, wenn keine Gleichspannung überlagert wird ($a=0$; $\beta_x = \beta_y = \beta$), bei $\beta=1/3$ zusammen. Führt der Arbeitspunkt über diese Stelle des Stabilitätsbereichs hinweg, so zeigt der Auffängerstrom wirklich ein schwaches Minimum (Fig. 1 und 2a). Mit $a \neq 0$ ist auch $\beta_x \neq \beta_y$, so daß die Summenresonanzlinien auseinandertreten sollten. Tatsächlich scheinen in diesem Fall zwei Intensitätsminima vorzuliegen (Fig. 2b). Sie sind jedoch so schwach ausgeprägt, daß ihre Lage nicht einwandfrei meßbar ist. Es könnte sich um die Linien $4 \frac{\beta_x}{2} + 2 \frac{\beta_y}{2} = 1$ und $2 \frac{\beta_x}{2} + 4 \frac{\beta_y}{2} = 1$ handeln, während die gleichzeitig zu erwartenden Resonanzen $6 \frac{\beta_x}{2} = 1$ und $6 \frac{\beta_y}{2} = 1$ nicht angeregt zu sein scheinen. Differenzresonanzen wurden weder bei dieser noch bei einer anderen Ordnung der Störung beobachtet. Eine theoretisch mögliche Resonanz 4. Ordnung war nicht feststellbar. Zwar zeigt der Auffängerstrom für $a=0$ ein kräftiges Minimum an der Stelle $\beta=1/2$ (Fig. 1); dieses spaltet aber für $a \neq 0$ in die zwei Linien $\beta_x = \frac{1}{2}$ und $\beta_y = \frac{1}{2}$ auf, während bei Resonanz 4. Ordnung außerdem noch die Summenlinie $2 \frac{\beta_x}{2} + 2 \frac{\beta_y}{2} = 1$ auftreten sollte. Die Absorption bei $\beta=1/2$ ist überdies im Vergleich zu derjenigen bei $\beta=1/3$

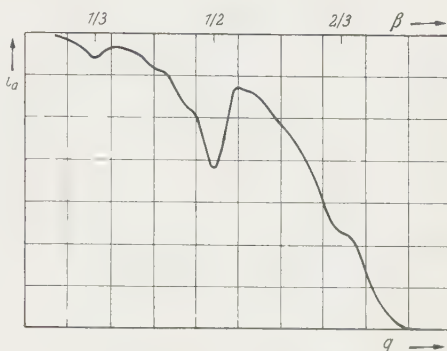


Fig. 1. Resonanzminima des Auffängerstroms i_a im Bereich $q \approx 0,35 \dots 0,95$ bei $a=0$. Die Flugzeit der Ionen entspricht 135 HF-Perioden

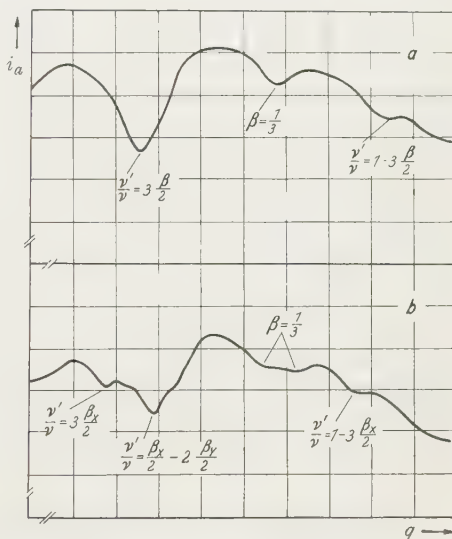


Fig. 2. Resonanzminima des Auffängerstroms i_a im Bereich $q \approx 0,25 \dots 0,6$ ohne bzw. mit Aufspaltung. Die Flugzeit der Ionen entspricht 155 HF-Perioden. Störspannung $V' = 75$ V_{eff}, Störfrequenz $\nu' = 970$ kHz. a) $a=0$; b) $a=0,011$

an der Stelle $\beta=1/2$ (Fig. 1); dieses spaltet aber für $a \neq 0$ in die zwei Linien $\beta_x = \frac{1}{2}$ und $\beta_y = \frac{1}{2}$ auf, während bei Resonanz 4. Ordnung außerdem noch die Summenlinie $2 \frac{\beta_x}{2} + 2 \frac{\beta_y}{2} = 1$ auftreten sollte. Die Absorption bei $\beta=1/2$ ist überdies im Vergleich zu derjenigen bei $\beta=1/3$

so stark, daß sie im wesentlichen nicht durch die Zwölfpolstörung verursacht sein kann.

b) Fehler im zeitlichen Feldverlauf. Selbst bei vollkommener Symmetrie der Elektrodenanordnung können in (2) weitere Störglieder auftreten. Verläuft die Hochfrequenzspannung nicht streng sinusförmig, so kommen Terme mit $N=2$, $n \neq 2$ vor. Da Oberwellen von ν keine Vierpolresonanzen im Innern des Stabilitätsgebiets erzeugen², interessieren hier nur die ungeradzahligen Harmonischen von $\nu/2$. Sie machen die Ionenbewegung auf den Linien $\beta_x=1/2$ und $\beta_y=1/2$ instabil. Dort fanden wir auch ziemlich ausgeprägte Intensitätsminima. Diese Resonanzerscheinung sollte verschwinden, wenn der HF-Generator ohne Frequenzverdopplung angesteuert wird, weil dann nur ganzzahlige Vielfache von ν im Spektrum vorkommen. Bei der experimentellen Prüfung dieser Behauptung zeigte sich jedoch keine Änderung der Tiefe des Minimums. Man muß deshalb schließen, daß die Vierpolterme mit $n=2m+1$ in (2) nicht wesentlich zur Absorption beitragen. Da im Aufspaltungsbild die Summenresonanz $2\frac{\beta_x}{2} + 2\frac{\beta_y}{2} = 1$ fehlt, kann es sich auch nicht um eine Resonanz 4. Ordnung handeln. Letztere ist zu erwarten, wenn durch Dejustierung der Elektrodenanordnung der zu $N=4$, $n=2$ gehörende Term in Gl. (2) vorkommt (s. unten). Die Erklärung des bei $\beta=1/2$ beobachteten Minimums steht daher noch aus.

c) Mechanische Justierfehler. Auch mangelhafte Justierung der Vierpolstäbe führt zum Auftreten von Störtermen in der Reihenentwicklung des Potentials. In diesem Fall können grundsätzlich Multipolglieder beliebiger Ordnung vorkommen. So läßt sich die Absorption bei $\beta=2/3$ (Fig. 1) als Resonanz 3. Ordnung deuten, die man einem Sechspolbeitrag zum Feld ($N=3$) zuschreiben kann. Da das Minimum ziemlich schwach ausgebildet ist und auf der Flanke der Stromkurve liegt, ist allerdings die die Ordnung der Resonanz charakterisierende Aufspaltung für $a \neq 0$ nicht meßbar.

Nichtlineare Resonanzen durch zusätzliche Störspannungen

Besser als an den Fehlern des fokussierenden Feldes lassen sich die nichtlinearen Resonanzeffekte mit Hilfe künstlicher Störfelder studieren, da man die Stärke und Frequenz der Zusatzspannung geeignet wählen kann. Wir legen die Hilfsspannung V' zwischen die x -Elektroden und setzen für das entstehende Störpotential wiederum eine Potenzreihenentwicklung analog der Gl. (2) an. Deren erstes Glied ($N=1$) entspricht dem früher³ behandelten homogenen Störfeld, das bei der Trennung hoher Ionenströme mit dem Massenfilter benutzt wird. Wenn die Störspannung symmetrisch zu den y -Elektroden liegt, entfallen alle

geraden Potenzen von ν . Der nächsthöhere Term ($N=3$) stellt ein Sechspolfeld dar, dessen Orientierung durch $\varepsilon_3=0$ gekennzeichnet ist. Er läßt sich an seinen Resonanzen ohne Schwierigkeit nachweisen. Man findet (Fig. 2) nicht nur die zu erwartenden Summenresonanzen 3. Ordnung bei $\frac{\nu'}{\nu} = 3 \frac{\beta_x}{2}$ und $\frac{\nu'}{\nu} = \frac{\beta_x}{2} + 2 \frac{\beta_y}{2}$, sondern auch eine Resonanzlinie bei $\frac{\nu'}{\nu} = 1 - 3 \frac{\beta_x}{2}$, die dem Term mit $s = -1$ in der Reihenentwicklung

$$x = \sum_{s=-\infty}^{+\infty} c_{2s} \frac{\cos}{\sin} 2\pi(s + \beta/2) \nu t$$

der Mathieu-Funktion zuzuordnen ist* und damit die Abweichung gegenüber dem Modell des harmonischen Oszillators charakterisiert.

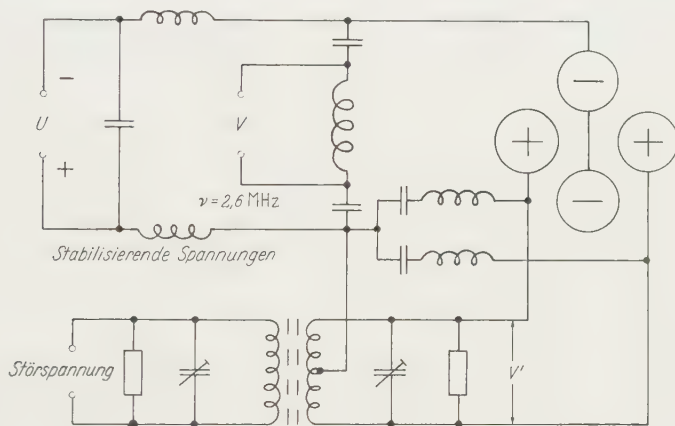


Fig. 3. Schaltbild der Spannungsversorgung des Elektrodensystems

Man erwartet eine zugehörige Summenresonanz bei $\frac{\nu'}{\nu} = 1 - \frac{\beta_x}{2} - 2 \frac{\beta_y}{2}$, die aber nicht beobachtet wurde, vermutlich weil sie bei den verfügbaren Störspannungen zu schwach ausgebildet war.

Die Zusatzspannung wurde über ein Bandfilter an die x -Elektroden gelegt. Zwei auf die Frequenz ν des fokussierenden Feldes abgestimmte Serienschwingkreise halten beide Stäbe bezüglich dieser Frequenz auf gleichem Potential (Fig. 3). Sind diese Kreise verstimmt, so entsteht zwischen den x -Elektroden eine Störspannung der Frequenz ν analog den eben erwähnten Zusatzspannungen. Die homogene Feldkomponente erzeugt keine Resonanz im Innern des Stabilitätsbereichs ($0 < \beta < 1$). Der Sechspolanteil hingegen verstärkt bei ausreichender Verstimmung eines der Kreise die Absorption bei $\beta = 2/3$ so weit, daß die Aufspaltung

* Siehe Gl. (11) der Arbeit von PAUL, REINHARD und VON ZAHN³.

des Minimums in die erwarteten Linien $3 \frac{\beta_x}{2} = 1$ und $\frac{\beta_x}{2} + 2 \frac{\beta_y}{2} = 1$ sich zeigen läßt.

Auch Vierpolresonanzen sind leicht zu erzeugen. An den x -Elektroden liegen gegen die y -Stäbe die Störspannungen

$$\alpha \cdot V' \cos 2\pi v' t = \frac{1}{2} V' \cos 2\pi v' t - \left(\frac{1}{2} - \alpha\right) V' \cos 2\pi v' t$$

und

$$-(1 - \alpha) V' \cos 2\pi v' t = -\frac{1}{2} V' \cos 2\pi v' t - \left(\frac{1}{2} - \alpha\right) V' \cos 2\pi v' t.$$

α ist dabei ein Symmetrieparameter. Der Anteil $\left(\frac{1}{2} - \alpha\right) V' \cos 2\pi v' t$ hat auf beiden Stäben gleiche Phase und erzeugt ein Quadrupolfeld ($\varepsilon_2 = 0$), das im Falle symmetrischer Einkopplung ($\alpha = 1/2$) verschwindet. Mit $\alpha = 0$ waren die zu erwartenden⁶ Resonanzen $\frac{v'}{v} = 2 \frac{\beta_x}{2}$ und $\frac{v'}{v} = 2 \frac{\beta_y}{2}$ ohne Schwierigkeiten nachweisbar. Für $a = 0$ war ferner die dem Glied mit $s = -1$ in der Reihendarstellung der Mathieu-Funktion zugeordnete Resonanz $\frac{v'}{v} = 1 - \beta$ zu erkennen*. Ihre Aufspaltung ließ sich allerdings nicht messen.

Die durch Feldfehler hervorgerufenen nichtlinearen Resonanzen spielen in der Theorie der Teilchenbeschleuniger mit starker Fokussierung eine überragende Rolle. Während sie jedoch wegen der extrem hohen Zahl der Umläufe im Synchrotron die Stabilität der Bewegung auf den Stoppbändern praktisch zerstören, sind sie, wie die Versuche zeigen, im Massenfilter so schwach ausgeprägt, daß sie sein Funktionieren nicht beeinträchtigen. Es gibt aber einen Fall, in dem sie bedeutungsvoll werden könnten. Die Zahl der Hochfrequenzperioden, denen die Teilchen im Feld ausgesetzt sind, ist in Vierpolspektrometern sehr hoher Auflösung entsprechend groß. Da die Resonanzlinien der Form $2 \frac{\beta_x}{2} + (K - 2) \frac{\beta_y}{2} = 1$ durch die Spitze des Stabilitätsdreiecks laufen, erscheint es durchaus möglich, daß geringfügige Dejustierungen des Elektrodensystems durch Multipolresonanz zum Auftreten „doppelter“ Massenlinien im Spektrum führen können, ähnlich wie dies an optischen Spektrallinien bei Selbstabsorption beobachtet wird.

* Das Bildungsgesetz der Resonanzstellen lautet offenbar so, daß die dem Term $s = l$ in der Reihenentwicklung der Mathieu-Funktion zugeordnete Resonanz der Ordnung K bei $\frac{v'}{v} = \left| \left(l + K \frac{\beta}{2} \right) \right|$ eintritt.

Autorenverzeichnis des 164. Bandes

- ASCHE, M., und F. ECKART, Zum Einfluß von Wasserstoff auf die Photoleitfähigkeit von CdS-Einkristallen. S. 529.
- BAUER, A., Zur Feldbogentheorie bei kalten, verdampfenden Kathoden. I. S. 563.
- BAUER, H. J., und E. SCHMIDBAUER, Über den Einfluß elektrolytischer Wasserstoffbeladung auf die Magnetisierung von Nickel. S. 367.
- BEHMENBURG, W., Thermoelektronen- und induzierte Photoelektronenemission bei Zinksulfid. S. 222.
- BIEM, W., Über die Temperaturabhängigkeit der Lichtabsorption durch Excitonen. S. 199.
- BOCK, R., Bestimmung des Compoundkern- und Stripping-Anteils der (d, p)- und (d, n)-Reaktionen an Zr^{94} und Zr^{96} . S. 546.
- BOERSCH, H., H. HAMISCH, D. WOHLLEBEN und K. GROHMANN, Beugung von Elektronenwellen an magnetischen Strukturen. S. 55.
- BUSCH, F. v., und W. PAUL, Isotopentrennung mit dem elektrischen Massenfilter. S. 581.
- Über nichtlineare Resonanzen im elektrischen Massenfilter als Folge von Feldfehlern. S. 588.
- DAMAŠKOVÁ, S., und K. PÁTEK, Der Einfluß eines elektrischen Feldes auf die Absorptionskante von ZnS. S. 428.
- DANIEL, H., und PH. PANUSSI, Das β -Spektrum des In^{114} . S. 303.
- DEHNEN, H., H. HÖNL und K. WESTPFAHL, Über die Unabhängigkeit der Sommerfeldschen Feinstrukturkonstanten vom Gravitationsfeld. S. 483.
- DEICHSEL, H., Herstellung und Nachweis polarisierter Elektronenstrahlen durch zweimalige Streuung von Glühelctronen kleiner Energie (1–2 keV) an Hg-Atomstrahlen. S. 156.
- DRAWIN, H.-W., Zur formelmäßigen Darstellung der Ionisierungsquerschnitte gegenüber Elektronenstoß. S. 513.
- DRECHSEL, W., Eine Anordnung zur photographischen Registrierung von Weißschen Bereichen bei Belichtungszeiten der Größenordnung 1 msec. S. 324.
- Über die Vergrößerung der meridionalen magnetooptischen Kerr-Drehung durch Aufdampfschichten. S. 308.
- ECKART, F., und H. SCHULZ, Kontaktspannungsmessungen an CdS-Einkristallen. S. 83.
- s. ASCHE, M., S. 529.
- EILENBERGER, G., Ein Beitrag zur Theorie der inneren Feldemission. S. 59.
- FISCHER, E. s. UHLENBUSCH, J. S. 190.
- FOREMAN, H., M. B. ROBERTS and E. H. LILLY, Radioactivity in Cervidae Antlers. S. 537.
- GREINER, W., Die Kernpolarisation in Mesonenatomen bei kugelsymmetrischen Mesonenzuständen. S. 374.
- GROHMANN, I., K. H. HELLWEGE und H. G. KAHLE, Spektrum, Zeeman-Effekt und Elektronenterme des dreiwertigen Holmiums in kristallinen Salzen. S. 243.
- GROHMANN, K. s. BOERSCH, H., H. HAMISCH und D. WOHLLEBEN. S. 55.
- GROSS, H., Hat das M -Zentrum in KCL ein magnetisches Moment? S. 341.
- HAMISCH, H. s. BOERSCH, H., D. WOHLLEBEN und K. GROHMANN. S. 55.
- HELLWEGE, K. H. s. GROHMANN, I. und H. G. KAHLE. S. 243.
- HENNIES, H. H. s. LANGHOFF, H. S. 166.
- HÖNL, H. s. DEHNEN, H. und K. WESTPFAHL. S. 483.
- HOHLFELD, K. s. MENZEL, E. S. 522.
- HORA, H., und H. MÜLLER, Phänomenologische Betrachtung zur Photon-Elektron-Wechselwirkung in einem Plasma. S. 359.

- HORSTMANN, M., und G. MEYER, Wirkungsquerschnitt und Winkelverteilung der elastischen und unelastischen Elektronenstreuung in Aluminiumschichten. S. 21.
- HÜFNER, S., Matricelemente für die Elektronenkonfiguration f^4 . I. Die Koeffizienten der Abstammungsanteile und die Matricelemente der Spin-Bahn-Kopplung. S. 257.
- Matricelemente für die Elektronenkonfiguration f^4 . II. Termschema des Ho^{3+} -Ions. S. 269.
- Matricelemente für die Elektronenkonfiguration f^4 . III. Die Eigenzustände des Ho^{3+} -Ions. S. 456.
- HYLLERAAS, E. A., Zur praktischen Lösung der relativistischen Einelektronengleichung. II. S. 493.
- KAHLE, H. G. s. GROHMANN, I. und K. H. HELLWEGE. S. 243.
- KANKELEIT, E., Untersuchung von Konversionselektronen beim Mößbauer-Effekt am Wolfram-182 mit einem magnetischen Spektrometer. S. 442.
- KANZLER, G., Zur Elektronennachemission von Chininsulfat und Dickit. S. 126.
- Zur Frage der Elektronennach- und induzierten Photoemission von Germanium und Silizium. S. 120.
- KELLER, M., Ein Biprisma-Interferometer für Elektronenwellen und seine Anwendung. S. 274.
- Elektronen-Zweistrahlininterferenzen mit hohem Gangunterschied. S. 292.
- KILIAN, P., Die Vernichtung von Positronen im Fluge. S. 416.
- KLEINPOPPEN, H., Vermessung der Lamb-Verschiebung des $3^2\text{S}_{1/2}$ -Zustandes gegenüber dem $3^2\text{P}_{1/2}$ -Zustand am Wasserstoffatom. S. 174.
- KRÜGER, L., und J. ROTHLEITNER, Zerfall negativer Myonen in der K-Schale S. 330.
- LANDÉ, A., Warum interferieren die Wahrscheinlichkeiten? S. 558.
- LANGHOFF, H., und H.-H. HENNIES, Zum experimentellen Nachweis von Zweiquantenzerfall beim 0^+-0^+ -Übergang des Zr^{90} . S. 166.
- LEHMPFUHL, G., und K. MOLIÈRE, Interferenzbrechung bei Durchstrahlung makroskopischer Kristallkeile. S. 389.
- LENZ, F., Eine Erweiterung des Cornu-Diagramms auf den Fall einer teildurchlässigen und phasenschiebenden Halbebene. S. 425.
- LEUTZ, H., Das β^+ -Spektrum des Na^{22} . S. 78.
- LILLY, E. H. s. FOREMAN, H. und M. B. ROBERTS. S. 537.
- LUDWIG, W., Die elastische Instabilität einer rein-harmonischen Kristalltheorie. S. 490.
- MARX, H., Mehrdimensionaler Hamiltonscher Formalismus. S. 129.
- MEIXNER, J., Der Drehimpulssatz in der Thermodynamik der irreversiblen Prozesse. S. 145.
- MENZEL, E., und K. HOHLFELD, Lichtmikroskopie mit mechanischer Vergrößerung. S. 522.
- MEYER, G. s. HORSTMANN, M. S. 21.
- MÖNCH, W., Messung der Fehlordnungenergie an abschreckend kondensierten Metallschichten bei tiefer Temperatur. S. 229.
- MOLIÈRE, K. s. LEHMPFUHL, G. S. 389.
- MÜLLER, H., Zur Frage des hydrodynamischen Verhaltens einfacher Makromolekülmodelle in einem inhomogenen Strömungsfeld. S. 139.
- s. HORA, H. S. 359.
- MÜLLER, K. G., Die kathodischen Entladungsgebiete der nichtstationären Glimmentladung. S. 40.
- NIESTERS, H. s. SCHMITZ, G. S. 409.
- PACHNER, J., Das Gravitationsfeld eines Massenpunktes im expandierenden Kosmos. S. 574.
- PANUSSI, PH. s. DANIEL, H. S. 303.
- PÁTEK, K. s. DAMÁŠKOVÁ, S. S. 428.
- PAUL, W. s. BUSCH, F. v. S. 581 u. 588.
- PFEFFER, W., Spezifische Wärmen von $\text{DyCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ und $\text{NdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ im Temperaturbereich zwischen $1,2^\circ\text{K}$ und 220°K . S. 295.
- RIEMANN, M., Über Ionisierungsgleichgewichte und Intensitäten von Spektrallinien in thermischen Mehrstoffplasmen. S. 507.

- ROBERTS, M. B. s. FOREMAN, H. und E. H. LILLY. S. 537.
- ROTHLEITNER, J. s. KRÜGER, L. S. 330.
- SALECKER, H., Formfaktor des π -Mesons und Struktur der Nukleonen. S. 463.
- SCHMIDBAUER, E. s. BAUER, H. J. S. 367.
- SCHMITZ, G., und H. NIESTERS, Die Zündung in Wasserstoff im Bereich des Nahdurchschlags. S. 409.
- SCHOLZ, A., und O. STASIW, Zur Absorption der belichteten Silberhalogenidkristalle mit Chalkogenionenzusätzen. S. 431.
- SCHULZ, H. s. ECKART, F. S. 83.
- SIOI, M., Zur Theorie des schmelzflüssigen Zustands. S. 93.
- SPRINGER, T., und W. WIEDEMANN, Untersuchung des Streuquerschnittes von Eis für sehr langsame Neutronen bei 4° K. S. 111.
- STASIW, O. s. SCHOLZ, A. S. 431.
- STICKFORTH, J., Zur Theorie der Bremsstrahlung in Plasmen hoher Temperatur. S. 1.
- UHLENBUSCH, J., und E. FISCHER, Hydromagnetische Strömung im kreiszylindrischen Rohr. S. 190.
- WESTPFAHL, K. s. DEHNEN, H., und H. HÖNL. S. 483.
- WIEDEMANN, W. s. SPRINGER, T. S. 111.
- WOHLLEBEN, D. s. BOERSCH, H., H. HAMISCH und K. GROHMANN. S. 55.

ZEITSCHRIFT FÜR PHYSIK

HERAUSGEGEBEN UNTER MITWIRKUNG
DES VERBANDES
DEUTSCHER PHYSIKALISCHER GESELLSCHAFTEN

VON

O. HAXEL UND J. HANS D. JENSEN

STERLING
CHEMISTRY
LIBRARY

164. BAND, 1. HEFT

MIT 40 FIGUREN IM TEXT
(ABGESCHLOSSEN AM 20. JULI 1961)



SPRINGER-VERLAG
BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG

1961

Zeitschrift für Physik

Begründet 1920. Herausgegeben unter Mitwirkung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft von K. Scheel und H. Geiger, ab Bd. 124—141 (1947—1955) von M. v. Laue und R. W. Pohl. Ab Band 129 unter Mitwirkung des Verbandes Deutscher Physikalischer Gesellschaften herausgegeben. Band 1—4 (1921); Braunschweig, Fr. Vieweg & Sohn. Ab Band 5: Berlin, Springer.

Die „Zeitschrift für Physik“ erscheint zur Ermöglichung rascher Veröffentlichung nach Maßgabe des eingehenden Materials. Der Preis des Bandes beträgt DM 62.—. Die Zeitschrift für Physik ist durch jede Buchhandlung zu beziehen.

Grundsätzlich dürfen nur Arbeiten eingereicht werden, die vorher weder im Inland noch im Ausland veröffentlicht worden sind. Der Autor verpflichtet sich, sie auch nachträglich nicht an anderer Stelle zu publizieren. Mit der Annahme des Manuskriptes und seiner Veröffentlichung durch den Verlag geht das Verlagsrecht für alle Sprachen und Länder einschließlich des Rechts der fotomechanischen Wiedergabe oder einer sonstigen Vervielfältigung an den Verlag über. Jedoch wird gewerblichen Unternehmen für den innerbetrieblichen Gebrauch nach Maßgabe des zwischen dem Börsenverein des Deutschen Buchhandels e.V. und dem Bundesverband der Deutschen Industrie abgeschlossenen Rahmenabkommens die Anfertigung einer fotomechanischen Vervielfältigung gestattet. Wenn für diese Zeitschrift kein Pauschalabkommen mit dem Verlag vereinbart worden ist, ist eine Wertmarke im Betrage von DM 0.30 pro Seite zu verwenden. Der Verlag läßt diese Beträge den Autorenverbänden zufließen.

Manuskriptsendungen sind zu richten an einen der Herren Herausgeber:

Professor Dr. O. Haxel, Heidelberg, Philosophenweg 12, II. Physikalisches Institut der Universität;

Professor Dr. J. Hans D. Jensen, Heidelberg, Philosophenweg 16, Institut für Theoretische Physik der Universität.

Das Manuskript muß völlig druckfertig und gut lesbar sein. Für den Text ist Maschinenschrift, für die Formeln jedoch nur Handschrift zu verwenden. Vorkommende gotische (Fraktur) oder griechische Buchstaben sowie einander ähnliche Zeichen sind durch verschiedenfarbige Unterstreichung besonders zu kennzeichnen. Die Literaturhinweise sind in Form von Fußnoten zu bringen, die innerhalb einer Arbeit durchnummeriert werden.

Autorenkorrekturen, d.h. nachträgliche Textänderungen werden, soweit sie 10 % der Satzkosten übersteigen, den Verfassern in Rechnung gestellt.

Die Mitarbeiter erhalten von ihrer Arbeit zusammen 75 Sonderdrucke unentgeltlich.

Springer-Verlag

Berlin-Wilmersdorf, Heidelberger Platz 3, Fernsprecher 83 03 01, Fernschreibnummer 01-83 319
Heidelberg, Neuenheimer Landstraße 28-30, Fernsprecher 279 01, Fernschreibnummer 04-61 723

164. Band	Inhalt	1. Heft Seite
STICKFORTH, J., Zur Theorie der Bremsstrahlung in Plasmen hoher Temperatur. Mit 6 Figuren im Text		1
HORSTMANN, M., und G. MEYER, Wirkungsquerschnitt und Winkelverteilung der elastischen und unelastischen Elektronenstreuung in Aluminiumschichten. Mit 6 Figuren im Text		21
MÜLLER, K. G., Die kathodischen Entladungsgebiete der nichtstationären Glimmentladung. Mit 6 Figuren im Text		40
BOERSCH, H., H. HAMISCH, D. WOHLLEBEN und K. GROHMANN, Beugung von Elektronenwellen an magnetischen Strukturen		55
EILENBERGER, G., Ein Beitrag zur Theorie der inneren Feldemission. Mit 3 Figuren im Text		59
LEUTZ, H., Das β^+ -Spektrum des Na ²² . Mit 3 Figuren im Text		78
ECKART, F., und H. SCHULZ, Kontaktspannungsmessungen an CdS-Finkristallen. Mit 4 Figuren im Text		83
SIOL, M., Zur Theorie des schmelzflüssigen Zustands. Mit 2 Figuren im Text		93
SPRINGER, T., und W. WIEDEMANN, Untersuchung des Streuquerschnittes von Eis für sehr langsame Neutronen bei 4° K. Mit 2 Figuren im Text		111
KANZLER, G., Zur Frage der Elektronennach- und induzierten Photoemission von Germanium und Silizium. Mit 5 Figuren im Text		120
KANZLER, G., Zur Elektronennachemission von Chininsulfat und Dickit. Mit 3 Figuren im Text		126

Die Wiedergabe von Gebrauchsnamen, Handelsnamen, Warenbezeichnungen usw. in dieser Zeitschrift berechtigt auch ohne besondere Kennzeichnung nicht zu der Annahme, daß solche Namen im Sinne der Warenzeichen- und Markenschutz-Gesetzgebung als frei zu betrachten wären und daher von jedermann benutzt werden dürften.

Postverlagsort Berlin

ZEITSCHRIFT FÜR PHYSIK

HERAUSGEGEBEN UNTER MITWIRKUNG
DES VERBANDES
DEUTSCHER PHYSIKALISCHER GESELLSCHAFTEN

VON

O. HAXEL UND J. HANS D. JENSEN

164. BAND, 2. HEFT

MIT 41 FIGUREN IM TEXT
(ABGESCHLOSSEN AM 3. AUGUST 1961)

STERLING
CHEMISTRY
LIBRARY



SPRINGER-VERLAG
BERLIN · GOTTINGEN · HEIDELBERG
1961

Z.
Physik

Zeitschrift für Physik

Begründet 1920. Herausgegeben unter Mitwirkung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft von K. Scheel und H. Geiger, ab Bd. 124—141 (1947—1955) von M. v. Laue und R.W. Pohl. Ab Band 129 unter Mitwirkung des Verbandes Deutscher Physikalischer Gesellschaften herausgegeben. Band 1—4 (1921): Braunschweig, Fr. Vieweg & Sohn. Ab Band 5: Berlin, Springer.

Die „Zeitschrift für Physik“ erscheint zur Ermöglichung rascher Veröffentlichung nach Maßgabe des eingehenden Materials. Der Preis des Bandes beträgt DM 62.—. Die Zeitschrift für Physik ist durch jede Buchhandlung zu beziehen.

Grundsätzlich dürfen nur Arbeiten eingereicht werden, die vorher weder im Inland noch im Ausland veröffentlicht worden sind. Der Autor verpflichtet sich, sie auch nachträglich nicht an anderer Stelle zu publizieren. Mit der Annahme des Manuskriptes und seiner Veröffentlichung durch den Verlag geht das Verlagsrecht für alle Sprachen und Länder einschließlich des Rechts der fotomechanischen Wiedergabe oder einer sonstigen Vervielfältigung an den Verlag über. Jedoch wird gewerblichen Unternehmen für den innerbetrieblichen Gebrauch nach Maßgabe des zwischen dem Börsenverein des Deutschen Buchhandels e.V. und dem Bundesverband der Deutschen Industrie abgeschlossenen Rahmenabkommens die Anfertigung einer fotomechanischen Vervielfältigung gestattet. Wenn für diese Zeitschrift kein Pauschalabkommen mit dem Verlag vereinbart worden ist, ist eine Wertmarke im Betrage von DM 0.30 pro Seite zu verwenden. Der Verlag läßt diese Beträge den Autorenverbänden zufließen.

Manuskriptsendungen sind zu richten an einen der Herren Herausgeber:

Professor Dr. O. Haxel, Heidelberg, Philosophenweg 12, II. Physikalisches Institut der Universität;
Professor Dr. J. Hans D. Jensen, Heidelberg, Philosophenweg 16, Institut für Theoretische Physik der Universität.

Das Manuskript muß völlig druckfertig und gut lesbar sein. Für den Text ist Maschinschrift, für die Formeln jedoch nur Handschrift zu verwenden. Vorkommende gotische (Fraktur) oder griechische Buchstaben sowie einander ähnliche Zeichen sind durch verschiedenfarbige Unterstreichung besonders zu kennzeichnen. Die Literaturhinweise sind in Form von Fußnoten zu bringen, die innerhalb einer Arbeit durchnummeriert werden.

Autorenkorrekturen, d.h. nachträgliche Textänderungen werden, soweit sie 10% der Satzkosten übersteigen, den Verfassern in Rechnung gestellt.

Die Mitarbeiter erhalten von ihrer Arbeit zusammen 75 Sonderdrucke unentgeltlich.

Springer-Verlag

Berlin-Wilmersdorf, Heidelberger Platz 3, Fernsprecher 830304, Fernschreibnummer 01-83 319
Heidelberg 4, Postfach 3027, Fernsprecher 27901, Fernschreibnummer 04-61 723

164. Band

Inhalt

2. Heft

Seite

MARX, H., Mehrdimensionaler Hamiltonscher Formalismus	129
MÜLLER, H., Zur Frage des hydrodynamischen Verhaltens einfacher Makromolekülmodelle in einem inhomogenen Strömungsfeld	139
MEIXNER, J., Der Drehimpulssatz in der Thermodynamik der irreversiblen Prozesse . .	145
DEICHSEL, H., Herstellung und Nachweis polarisierter Elektronenstrahlen durch zweimalige Streuung von Glühelctronen kleiner Energie (1—2 keV) an Hg-Atomstrahlen. Mit 8 Figuren im Text	156
LANGHOFF, H., und H.-H. HENNIES, Zum experimentellen Nachweis von Zweiquantenzerfall beim 0^+-0^+ -Übergang des Zr^{90} . Mit 4 Figuren im Text	166
KLEINPOPPEN, H., Vermessung der Lamb-Verschiebung des $3^2S_{1/2}$ -Zustandes gegenüber dem $3^2P_{1/2}$ -Zustand am Wasserstoffatom. Mit 8 Figuren im Text	174
UHLÉNBUCH, J., und E. FISCHER, Hydromagnetische Strömung im kreiszylindrischen Rohr. Mit 5 Figuren im Text	190
BIEM, W., Über die Temperaturabhängigkeit der Lichtabsorption durch Excitonen. Mit 3 Figuren im Text	199
BEHMENBURG, W., Thermoelektronen- und induzierte Photoelektronenemission bei Zinksulfid. Mit 6 Figuren im Text	222
MÖNCH, W., Messung der Fehlordnungsenergie an abschreckend kondensierten Metallschichten bei tiefer Temperatur. Mit 7 Figuren im Text	229

Die Wiedergabe von Gebrauchsnamen, Handelsnamen, Warenbezeichnungen usw. in dieser Zeitschrift berechtigt auch ohne besondere Kennzeichnung nicht zu der Annahme, daß solche Namen im Sinne der Warenzeichen- und Markenschutz-Gesetzgebung als frei zu betrachten wären und daher von jedermann benutzt werden dürften.

Postverlagsort Berlin

ZEITSCHRIFT FÜR PHYSIK

HERAUSGEGEBEN UNTER MITWIRKUNG
DES VERBANDES
DEUTSCHER PHYSIKALISCHER GESELLSCHAFTEN

VON

O. HAXEL UND J. HANS D. JENSEN

STERLING
CHEMISTRY
LIBRARY

164. BAND, 3. HEFT

MIT 57 FIGUREN IM TEXT

(ABGESCHLOSSEN AM 21. AUGUST 1961)



SPRINGER-VERLAG
BERLIN · GOTTINGEN · HEIDELBERG
1961

Z.
Physik

Zeitschrift für Physik

Begründet 1920. Herausgegeben unter Mitwirkung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft von *K. Scheel* und *H. Geiger*, ab Bd. 124—141 (1947—1955) von *M. v. Laue* und *R.W. Pohl*. Ab Band 129 unter Mitwirkung des Verbandes Deutscher Physikalischer Gesellschaften herausgegeben. Band 1—4 (1921): Braunschweig, Fr. Vieweg & Sohn. Ab Band 5: Berlin, Springer.

Die „Zeitschrift für Physik“ erscheint zur Ermöglichung rascher Veröffentlichung nach Maßgabe des eingehenden Materials. Der Preis des Bandes beträgt DM 62.—. Die Zeitschrift für Physik ist durch jede Buchhandlung zu beziehen.

Grundsätzlich dürfen nur Arbeiten eingereicht werden, die vorher weder im Inland noch im Ausland veröffentlicht worden sind. Der Autor verpflichtet sich, sie auch nachträglich nicht an anderer Stelle zu publizieren. Mit der Annahme des Manuskriptes und seiner Veröffentlichung durch den Verlag geht das Verlagsrecht für alle Sprachen und Länder einschließlich des Rechts der fotomechanischen Wiedergabe oder einer sonstigen Vervielfältigung an den Verlag über. Jedoch wird gewerblichen Unternehmen für den innerbetrieblichen Gebrauch nach Maßgabe des zwischen dem Börsenverein des Deutschen Buchhandels e.V. und dem Bundesverband der Deutschen Industrie abgeschlossenen Rahmenabkommens die Anfertigung einer fotomechanischen Vervielfältigung gestattet. Wenn für diese Zeitschrift kein Pauschalabkommen mit dem Verlag vereinbart worden ist, ist eine Wertmarke im Betrage von DM 0.30 pro Seite zu verwenden. Der Verlag läßt diese Beträge den Autorenverbänden zufließen.

Manuskriptendungen sind zu richten an einen der Herren Herausgeber:

Professor Dr. O. Haxel, Heidelberg, Philosophenweg 12, II. Physikalisches Institut der Universität;

Professor Dr. J. Hans D. Jensen, Heidelberg, Philosophenweg 16, Institut für Theoretische Physik der Universität.

Das Manuskript muß *völlig druckfertig und gut lesbar* sein. Für den Text ist Maschinenschrift, für die Formeln jedoch nur Handschrift zu verwenden. Vorkommende gotische (Fraktur) oder griechische Buchstaben sowie einander ähnliche Zeichen sind durch verschiedenfarbige Unterstreichung besonders zu kennzeichnen. Die *Literaturhinweise* sind in Form von Fußnoten zu bringen, die innerhalb einer Arbeit durchnummeriert werden.

Autorenkorrekturen, d.h. nachträgliche Textänderungen werden, soweit sie 10 % der Satzkosten übersteigen, den Verfassern in Rechnung gestellt.

Die Mitarbeiter erhalten von ihrer Arbeit zusammen 75 Sonderdrucke unentgeltlich.

Springer-Verlag

Berlin-Wilmersdorf, Heidelberger Platz 3, Fernsprecher 83 03 01, Fernschreibnummer 01-83 319
Heidelberg 1, Postfach 3027, Fernsprecher 279 01, Fernschreibnummer 04-61 723

164. Band

Inhalt

3. Heft Seite

GROHMANN, I., K.H. HELLWEGE und H.G. KAHLE, Spektrum, Zeeman-Effekt und Elektronenterme des dreiwertigen Holmiums in kristallinen Salzen. Mit 7 Figuren im Text.	243
HÜFNER, S., Matrixelemente für die Elektronenkonfiguration f^4 . I. Die Koeffizienten der Abstammungsanteile und die Matrixelemente der Spin-Bahn-Kopplung . . .	257
HÜFNER, S., Matrixelemente für die Elektronenkonfiguration f^4 . II. Termschema des Ho^{3+} -Ions. Mit 1 Figur im Text.	269
KELLER, M., Ein Biprisma-Interferometer für Elektronenwellen und seine Anwendung. Mit 10 Figuren im Text.	274
KELLER, M., Elektronen-Zweistrahlinterferenzen mit hohem Gangunterschied. Mit 1 Figur im Text.	292
PFEFFER, W., Spezifische Wärmen von $\text{DyCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ und $\text{NdCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ im Temperaturbereich zwischen 1,2 °K und 220 °K. Mit 5 Figuren im Text.	295
DANIEL, H., und PH. PANUSSI, Das β -Spektrum des In^{114} . Mit 4 Figuren im Text . . .	303
DRECHSEL, W., Über die Vergrößerung der meridionalen magnetooptischen Kerr-Drehung durch Aufdampfschichten. Mit 11 Figuren im Text.	308
DRECHSEL, W., Eine Anordnung zur photographischen Registrierung von Weißschen Bereichen bei Belichtungszeiten der Größenordnung 1 msec. Mit 4 Figuren im Text	324
KRÜGER, L., und J. ROTHLEITNER, Zerfall negativer Myonen in der K-Schale. Mit 3 Figuren im Text	330
GROSS, H., Hat das M-Zentrum in KCL ein magnetisches Moment? Mit 11 Figuren im Text.	341

Die Wiedergabe von Gebrauchsnamen, Handelsnamen, Warenbezeichnungen usw. in dieser Zeitschrift berechtigt auch ohne besondere Kennzeichnung nicht zu der Annahme, daß solche Namen im Sinne der Warenzeichen- und Markenschutz-Gesetzgebung als frei zu betrachten wären und daher von jedermann benutzt werden dürften.

NOV 8 1961

Postverlagsort Berlin

ZEITSCHRIFT FÜR PHYSIK

HERAUSGEGEBEN UNTER MITWIRKUNG
DES VERBANDES
DEUTSCHER PHYSIKALISCHER GESELLSCHAFTEN

VON

O. HAXEL UND J. HANS D. JENSEN

STERLING
CHEMISTRY
LIBRARY

164. BAND, 4. HEFT

MIT 64 FIGUREN IM TEXT

(ABGESCHLOSSEN AM 4. SEPTEMBER 1961)



SPRINGER-VERLAG
BERLIN · GOTTINGEN · HEIDELBERG
1961

Z.
Physik

Zeitschrift für Physik

Begründet 1920. Herausgegeben unter Mitwirkung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft von K. Scheel und H. Geiger, ab Bd. 124—141 (1947—1955) von M. v. Laue und R. W. Pohl. Ab Band 129 unter Mitwirkung des Verbandes Deutscher Physikalischer Gesellschaften herausgegeben. Band 1—4 (1921): Braunschweig, Fr. Vieweg & Sohn. Ab Band 5: Berlin, Springer.

Die „Zeitschrift für Physik“ erscheint zur Ermöglichung rascher Veröffentlichung nach Maßgabe des eingehenden Materials. Der Preis des Bandes beträgt DM 62.—. Die Zeitschrift für Physik ist durch jede Buchhandlung zu beziehen.

Grundsätzlich dürfen nur Arbeiten eingereicht werden, die vorher weder im Inland noch im Ausland veröffentlicht worden sind. Der Autor verpflichtet sich, sie auch nachträglich nicht an anderer Stelle zu publizieren. Mit der Annahme des Manuskriptes und seiner Veröffentlichung durch den Verlag geht das Verlagsrecht für alle Sprachen und Länder einschließlich des Rechts der fotomechanischen Wiedergabe oder einer sonstigen Vervielfältigung an den Verlag über. Jedoch wird gewerblichen Unternehmen für den innerbetrieblichen Gebrauch nach Maßgabe des zwischen dem Börsenverein des Deutschen Buchhandels e.V. und dem Bundesverband der Deutschen Industrie abgeschlossenen Rahmenabkommens die Anfertigung einer fotomechanischen Vervielfältigung gestattet. Wenn für diese Zeitschrift kein Pauschalabkommen mit dem Verlag vereinbart worden ist, ist eine Wertmarke im Betrage von DM 0.30 pro Seite zu verwenden. Der Verlag läßt diese Beträge den Autorenverbänden zufließen.

Manuskriptsendungen sind zu richten an einen der Herren Herausgeber:

Professor Dr. O. Haxel, Heidelberg, Philosophenweg 12, II. Physikalisches Institut der Universität;

Professor Dr. J. Hans D. Jensen, Heidelberg, Philosophenweg 16, Institut für Theoretische Physik der Universität.

Das Manuskript muß völlig druckfertig und gut lesbar sein. Für den Text ist Maschinschrift, für die Formeln jedoch nur Handschrift zu verwenden. Vorkommende gotische (Fraktur) oder griechische Buchstaben sowie einander ähnliche Zeichen sind durch verschiedenfarbige Unterstreichung besonders zu kennzeichnen. Die Literaturhinweise sind in Form von Fußnoten zu bringen, die innerhalb einer Arbeit durchnummeriert werden.

Autorenkorrekturen, d.h. nachträgliche Textänderungen werden, soweit sie 10 % der Satzkosten übersteigen, den Verfassern in Rechnung gestellt.

Die Mitarbeiter erhalten von ihrer Arbeit zusammen 75 Sonderdrucke unentgeltlich.

Springer-Verlag

Berlin-Wilmersdorf, Heidelberger Platz 3, Fernsprecher 830304, Fernschreibnummer 01-83 319
Heidelberg 1, Postfach 3027, Fernsprecher 27901, Fernschreibnummer 04-61 723

164. Band	Inhalt	4. Heft Seite
HORA, H., und H. MÜLLER, Phänomenologische Betrachtung zur Photon-Elektron-Wechselwirkung in einem Plasma. Mit 1 Figur im Text		359
BAUER, H. J., und E. SCHMIDBAUER, Über den Einfluß elektrolytischer Wasserstoffbeladung auf die Magnetisierung von Nickel. Mit 8 Figuren im Text		367
GREINER, W., Die Kernpolarisation in Mesonenatomen bei kugelsymmetrischen Mesonenzuständen. Mit 4 Figuren im Text		374
LEHMPFUHL, G., und K. MOLIÈRE, Interferenzbrechung bei Durchstrahlung makroskopischer Kristallkeile. Mit 10 Figuren im Text		389
SCHMITZ, G., und H. NIESTERS, Die Zündung in Wasserstoff im Bereich des Nahdurchschlags. Mit 11 Figuren im Text		409
KILIAN, P., Die Vernichtung von Positronen im Fluge. Mit 5 Figuren im Text		416
LENZ, F., Eine Erweiterung des Cornu-Diagramms auf den Fall einer teildurchlässigen und phasenschiebenden Halbebene. Mit 2 Figuren im Text		425
DAMAŠKOVÁ, S., und K. PÁTEK, Der Einfluß eines elektrischen Feldes auf die Absorptionskante von ZnS. Mit 3 Figuren im Text		428
SCHOLZ, A., und O. STASIW, Zur Absorption der belichteten Silberhalogenidkristalle mit Chalkogenionenzusätzen. Mit 4 Figuren im Text		431
KANKELIT, E., Untersuchung von Konversionselektronen beim Mößbauer-Effekt am Wolfram-182 mit einem magnetischen Spektrometer. Mit 6 Figuren im Text.		442
HÜFNER, S., Matrixelemente für die Elektronenkonfiguration f^4 . III. Die Eigenzustände des Ho^{3+} -Ions		456
SALECKER, H., Formfaktor des π -Mesons und Struktur der Nukleonen. Mit 10 Figuren im Text		463

Die Wiedergabe von Gebrauchsnamen, Handelsnamen, Warenbezeichnungen usw. in dieser Zeitschrift berechtigt auch ohne besondere Kennzeichnung nicht zu der Annahme, daß solche Namen im Sinne der Warenzeichen- und Markenschutz-Gesetzgebung als frei zu betrachten wären und daher von jedermann benutzt werden dürften.

Postverlagsort Berlin

ZEITSCHRIFT FÜR PHYSIK

HERAUSGEGEBEN UNTER MITWIRKUNG
DES VERBANDES
DEUTSCHER PHYSIKALISCHER GESELLSCHAFTEN

VON

O. HAXEL UND J. HANS D. JENSEN

STERLING
CHEMISTRY
LIBRARY

164. BAND, 5. (SCHLUSS-) HEFT

MIT 34 FIGUREN IM TEXT

(ABGESCHLOSSEN AM 4. OKTOBER 1961)



SPRINGER-VERLAG
BERLIN · GÖTTINGEN · HEIDELBERG
1961

Zeitschrift für Physik

Begründet 1920. Herausgegeben unter Mitwirkung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft von K. Scheel und H. Geiger, ab Bd. 124—141 (1947—1955) von M. v. Laue und R.W. Pohl. Ab Band 129 unter Mitwirkung des Verbandes Deutscher Physikalischer Gesellschaften herausgegeben. Band 1—4 (1921): Braunschweig, Fr. Vieweg & Sohn. Ab Band 5: Berlin, Springer.

Die „Zeitschrift für Physik“ erscheint zur Ermöglichung rascher Veröffentlichung nach Maßgabe des eingehenden Materials. Der Preis des Bandes beträgt DM 62.—. Die Zeitschrift für Physik ist durch jede Buchhandlung zu beziehen.

Grundsätzlich dürfen nur Arbeiten eingereicht werden, die vorher weder im Inland noch im Ausland veröffentlicht worden sind. Der Autor verpflichtet sich, sie auch nachträglich nicht an anderer Stelle zu publizieren. Mit der Annahme des Manuskriptes und seiner Veröffentlichung durch den Verlag geht das Verlagsrecht für alle Sprachen und Länder einschließlich des Rechts der fotomechanischen Wiedergabe oder einer sonstigen Vervielfältigung an den Verlag über. Jedoch wird gewerblichen Unternehmen für den innerbetrieblichen Gebrauch nach Maßgabe des zwischen dem Börsenverein des Deutschen Buchhandels e.V. und dem Bundesverband der Deutschen Industrie abgeschlossenen Rahmenabkommens die Anfertigung einer fotomechanischen Vervielfältigung gestattet. Wenn für diese Zeitschrift kein Pauschalabkommen mit dem Verlag vereinbart worden ist, ist eine Wertmarke im Betrage von DM 0.30 pro Seite zu verwenden. Der Verlag läßt diese Beträge den Autorenverbänden zufließen.

Manuskriptsendungen sind zu richten an einen der Herren Herausgeber:

Professor Dr. O. Haxel, Heidelberg, Philosophenweg 12, II. Physikalisches Institut der Universität;

Professor Dr. J. Hans D. Jensen, Heidelberg, Philosophenweg 16, Institut für Theoretische Physik der Universität.

Das Manuskript muß völlig druckfertig und gut lesbar sein. Für den Text ist Maschinenschrift, für die Formeln jedoch nur Handschrift zu verwenden. Vorkommende gotische (Fraktur) oder griechische Buchstaben sowie einander ähnliche Zeichen sind durch verschiedenfarbige Unterstreichung besonders zu kennzeichnen. Die Literaturhinweise sind in Form von Fußnoten zu bringen, die innerhalb einer Arbeit durchnummeriert werden.

Autorenkorrekturen, d.h. nachträgliche Textänderungen werden, soweit sie 10 % der Satzkosten übersteigen, den Verfassern in Rechnung gestellt.

Die Mitarbeiter erhalten von ihrer Arbeit zusammen 75 Sonderdrucke unentgeltlich.

Springer-Verlag

Berlin-Wilmersdorf, Heidelberger Platz 3, Fernsprecher 830301, Fernschreibnummer 01-83 319

Heidelberg 1, Postfach 3027, Fernsprecher 27901, Fernschreibnummer 04-61 723

164. Band

Inhalt

5. (Schluß-)Heft

	Seite
DEHNEN, H., H. HÖNL und K. WESTPFAHL, Über die Unabhängigkeit der Sommerfeldschen Feinstrukturkonstanten vom Gravitationsfeld	483
LUDWIG, W., Die elastische Instabilität einer rein-harmonischen Kristalltheorie	490
HYLLERAAS, E. A., Zur praktischen Lösung der relativistischen Einelektronengleichung. II	493
RIEMANN, M., Über Ionisierungsgleichgewichte und Intensitäten von Spektrallinien in thermischen Mehrstoffplasmen. Mit 5 Figuren im Text	507
DRAWIN, H.-W., Zur formelmäßigen Darstellung der Ionisierungsquerschnitte gegenüber Elektronenstoß. Mit 6 Figuren im Text	513
MENZEL, E., und K. HOHLFELD, Lichtmikroskopie mit mechanischer Vorvergrößerung. Mit 6 Figuren im Text	522
ASCHE, M., und F. ECKART, Zum Einfluß von Wasserstoff auf die Photoleitfähigkeit von CdS-Einkristallen. Mit 5 Figuren im Text	529
FOREMAN, H., M. B. ROBERTS and E. H. LILLY, Radioactivity in Cervidae Antlers. With 1 Figure in the Text	537
BOCK, R., Bestimmung des Compoundkern- und Stripping-Anteils der (d, p)- und (d, n)-Reaktionen an Zr^{94} und Zr^{96} . Mit 4 Figuren im Text	546
LANDÉ, A., Warum interferieren die Wahrscheinlichkeiten?	558
BAUER, A., Zur Feldbogentheorie bei kalten, verdampfenden Kathoden. I. Mit 4 Figuren im Text	563
PACHNER, J., Das Gravitationsfeld eines Massenpunktes im expandierenden Kosmos	574
BUSCH, F. v., und W. PAUL, Isotopentrennung mit dem elektrischen Massenfilter	581
BUSCH, F. v., und W. PAUL, Über nichtlineare Resonanzen im elektrischen Massenfilter als Folge von Feldfehlern. Mit 3 Figuren im Text	588
Autorenverzeichnis	595

Die Wiedergabe von Gebrauchsnamen, Handelsnamen, Warenbezeichnungen usw. in dieser Zeitschrift berechtigt auch ohne besondere Kennzeichnung nicht zu der Annahme, daß solche Namen im Sinne der Warenzeichen- und Markenschutz-Gesetzgebung als frei zu betrachten wären und daher von jedermann benutzt werden dürften.

